ENTWICKLUNG EINER 1,25 MV-ELEKTRONENBEUGUNGSANLAGE UND UNTERSUCHUNG DYNAMISCHER VIELSTRAHLWECHSELWIRKUNGEN VON ELEKTRONEN IN EINKRISTALLEN

Dissertation

zur Erlangung des Grades eines Doktors
der Naturwissenschaften

der Fakultät für Physik
der Eberhard-Karls-Universität zu Tübingen

vorgelegt von

Hermann Stumpp
aus Hirrlingen

1983

83 372

Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41547612_0022

ENTWICKLUNG EINER 1,25 MV-ELEKTRONENBEUGUNGSANLAGE UND UNTERSUCHUNG DYNAMISCHER VIELSTRAHLWECHSELWIRKUNGEN VON ELEKTRONEN IN EINKRISTALLEN

Dissertation

zur Erlangung des Grades eines Doktors
der Naturwissenschaften

der Fakultät für Physik
der Eberhard-Karls-Universität zu Tübingen

vorgelegt von

Hermann Stumpp
aus Hirrlingen

1983

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

Tag der mündlichen Prüfung:	14. Juli 1983
Dekan:	Prof. Dr. A. Fäßler
1. Berichterstatter:	Prof. Dr. G. Möllenstedt
2. Berichterstatter:	Prof. Dr. E. Kasper

Inhalt

I. EINLEITUNG 1

II. DIE 1,25 MEV - ELEKTRONENBEUGUNGSANLAGE 3

1. Gesamtaufbau 3

2. Der Van de Graaff - Hochspannungsgenerator 8

3. Der Elektronenbeschleuniger 9

a) Übersicht 9

b) Das Beschleunigungsrohr 11

c) Die Hochspannungselektrode des Beschleunigers 14

d) Das Elektronenstrahl - Injektionssystem 19

e) Elektronenoptische Eigenschaften des Beschleunigers 23

4. Die elektronenoptische Beugungssäule 26

a) Übersicht 26

b) Aufbau für Beugung im konvergenten Bündel 28

c) Elektromagnetische Linse, Objekthalterung und Blende 30

d) Weitere Bauelemente 33

5. Die Vakuumanlage 34

6. Die Verbindung Hochspannungsgenerator - Beschleuniger 35

III. ERZEUGUNG, STABILISIERUNG UND MESSUNG DER HOCHSPANNUNG 36

1. Abschätzung der erreichbaren Elektronenenergien 36

2. Steigerung der Betriebsspannung des Van de Graaff - Generators 38

3. Messung und Stabilisierung der Hochspannung 41

4. Messung der Stabilität der Hochspannung 46

IV. THEORETISCHE GRUNDLAGEN ZUR ELEKTRONENBEUGUNG IN PERFEKTEN EINKRISTALLEN 53

1. Die geometrische und die kinematische Theorie 53
2. Die dynamische Theorie der Elektronenbeugung 56
3. Berücksichtigung von Absorptionserscheinungen in der dynamischen Theorie 62
4. Die Zweistrahlnäherung der dynamischen Theorie 66
5. Übergang zum Vielstrahlfall der systematischen Reihe 68
6. Elektronenbeugung im konvergenten Bündel 73
7. Zur Messung und Berechnung von Fourierkoeffizienten des komplexen Kristallpotentiales 77

V. ELEKTRONENBEUGUNGSEXPERIMENTE IM ÜBERGANGSBEREICH ZWISCHEN ZWEI- UND MEHRSTRAHLFALL 82

1. Beugung im konvergenten Bündel an Muskovit 82
2. Beugung an den (400)-Netzebenen von Silizium 86
3. Der Zusammenbruch der Zweistrahlnäherung bei der Beugung an den (220)-Netzebenen von Silizium 88
4. Berechnung der Strukturpotentiale der höheren Ordnungen von Silizium aus Atomstreuamplituden 93
5. Auswertung von Beugungsdiagrammen im konvergenten Bündel durch numerische Vielstrahlrechnungen 96
6. Vergleich von Zwei- und Vielstrahlauswertungen 103

VI. UNTERSUCHUNGEN ZUM CRITICAL-VOLTAGE EFFEKT 106

1. Einführung und Problemstellung 106

2. Der Critical-Voltage Effekt am 333-Reflex von Silizium in Kikuchi-Beugungsdiagrammen 108

3. Näherungen für den Critical-Voltage Effekt 112

4. Der Critical-Voltage Effekt als spezieller Vielstrahlfall der dynamischen Theorie 114

5. Auswertung von Critical-Voltage-Beugungsexperimenten unter Berücksichtigung von Messungen im konvergenten Bündel 124

6. Untersuchungen zur direkten Beobachtbarkeit des Critical-Voltage Effektes im konvergenten Bündel 130

VII. ZUSAMMENFASSUNG 145

VIII. ANHANG 149

IX. LITERATURVERZEICHNIS 155

A b s t r a c t

STUMPP, HERMANN

ENTWICKLUNG EINER 1,25 MV - ELEKTRONENBEUGUNGSANLAGE UND UNTERSUCHUNG DYNAMISCHER VIELSTRAHLWECHSELWIRKUNGEN VON ELEKTRONEN IN EINKRISTALLEN

Zur Untersuchung dynamischer Zwei- und Vielstrahleffekte bei hohen Spannungen wurde eine 1,25 MeV-Elektronenbeugungsanlage entwickelt. Der Beschleuniger besteht aus einem ferngesteuerten 30 kV-Injektionssystem und einem aus Epoxydharz gegossenen Beschleunigungsrohr . Die Hochspannung wird in einem mehrstufigen Verfahren bis zu $5 \cdot 10^{-5}$ stabilisiert, und über einen in das Beschleunigungsrohr integrierten, frequenzunabhängigen Spannungsteiler gemessen. Die Eichung erfolgt über Elektronenbeugung. Zur Messung der Konstanz der Hochspannung wird eine Energieanalyse der Elektronen durchgeführt, die auf der Ausnutzung der chromatischen Fehler einer Magnetlinse beruht.

Es wurden Beugungsexperimente im konvergenten Bündel an den (331)-Netzebenen von Muskovit sowie an den (400)- und (220)-Netzebenen von Silizium durchgeführt. Für die Auswertung der Diagramme wurden Computerprogramme entwickelt, die die anomale Absorption auf der Grundlage des Blochwellen-Modelles durch strenge Lösung eines komplexen Eigenwertproblemes berücksichtigen. Der Vergleich mit berechneten "rocking curves" ergibt eine Abschätzung für den Gültigkeitsbereich der Zweistrahlnäherung bei der Beugung im konvergenten Bündel. Ferner werden die Struktur- und Absorptionspotentiale der Reflexe bestimmt.

In Kikuchi-Diagrammen und im konvergenten Bündel wurde der Critical-Voltage Effekt am 333-Reflex von Silizium untersucht und daraus das Strukturpotential V_{111} mit besonderer Präzision ermittelt. Die von einer englischen Arbeitsgruppe berechneten außergewöhnlichen Intensitätsmodulationen in rocking curves bei der Critical-Voltage V_c werden ebenfalls für den 333-Reflex von Silizium gefunden. Unsere Experimente und von uns gemachte Beobachtungen bei den Berechnungen deuten jedoch darauf hin, daß es sich dabei um rechnerische Artefakte handelt, die auf einen Zusammenbruch des Modells des imaginären Absorptionspotentiales bei der Critical Voltage zurückzuführen sind.

I

EINLEITUNG

Transmissions-Elektronenmikroskope arbeiten in der Mehrzahl mit Beschleunigungsspannungen bei 100 kV. Ein Maß für ihr Auflösungsvermögen ist die erste Nullstelle der Phasenkontrast-Übertragungsfunktion. Sie liegt für 100 kV-Geräte unter optimalen Bedingungen zwischen 2 und 3 Å. Die durchstrahlbaren Präparatdicken sind für viele aktuelle Probleme der Metallurgie und Biologie allerdings zu gering. Massivere Objekte werden neben der neuen Technik der Raster-Transmissions-Elektronenmikroskopie vor allem durch höhere Beschleunigungsspannungen zugänglich. So erhöhen sich für 1 MeV-Elektronen die durchstrahlbaren Dicken um den Faktor 3 bis 10.

Der wichtigste Aspekt bei der Anwendung größerer Strahlenergien ist jedoch die Möglichkeit zur Verbesserung des Auflösungsvermögens der Elektronenmikroskope. Sie ergibt sich aus der Abnahme der Wellenlänge der Elektronen und aus dem geringer werdenden Einfluß der chromatischen Abberationen. Unter Berücksichtigung realistischer Bedingungen gibt Herrmann [1] für eine Beschleunigungsspannung von 1 MV ein gegenüber 100 kV um etwa den Faktor 2 besseres theoretisches Auflösungsvermögen an. Trotz des erforderlichen hohen technologischen und finanziellen Aufwandes wurde in neuester Zeit über die Entwicklung von Höchstauflösungs-Instrumenten berichtet, die bei 0,5 MV und bei 1,0 MV arbeiten und annähernd die theoretischen Werte erreichen.

Beim Übergang zu hohen Beschleunigungsspannungen ändern sich nicht nur die Übertragungseigenschaften der Geräte, sondern auch die Wechselwirkungen der Elektronen mit den Objekten. Ihr Verständnis ist aber die Grundvoraussetzung für eine richtige Interpretation der Abbildungen und Analysen. In der vorliegenden Arbeit sollen die Vorgänge untersucht werden, die beim Durchstrahlen von Einkristallen mit Elektronen hoher Energien auftreten. Zu ihrer Beschreibung stehen mit zunehmender Kompliziertheit die geometrische, die kinematische und die dynamische Theorie der Elektronenbeugung zur Verfügung. In der Anfangszeit der Höchstspannungs-Elektronenmikroskopie war man noch der Meinung, die Elektronen würden bei hohen Energien zu einem kinematischen Verhalten übergehen. Heute weiß man, daß genau das Gegenteil der Fall ist. Die Vorgänge werden durch eine Zunahme dynamischer Wechselwirkungen komplizierter. Überwindet man allerdings diese Schwierigkeiten, dann ergeben sich aus diesen Erscheinungen Möglichkeiten für eine besonders genaue Bestimmung von Kristallstrukturdaten.

Zur Erreichung dieses Zieles wurde eine 1,25 MV-Elektronen-Beugungsanlage aufgebaut. Neben der Deutung und Vermessung von Beugungsdiagrammen bei hohen Energien wird insbesondere der als spezieller Vielstrahlfall der dynamischen Theorie auftretende "Critical-Voltage Effekt" untersucht.

II.

DIE 1,25 MEV - ELEKTRONENBEUGUNGSANLAGE

II.1 Gesamtaufbau

Die 1,25 MV - Elektronenbeugungsanlage wurde im Hochspannungslabor des Institutes für Angewandte Physik der Universität Tübingen aufgebaut . Die Halle ist 15 m lang, 8 m breit und 8 m hoch. Es stehen zwei 5 m tiefe Experimentiergruben mit einer Grundfläche von jeweils 2,5m x 2,5 m zur Verfügung, die über einen Treppenaufgang aus der Halle zugänglich sind. Die Wände der

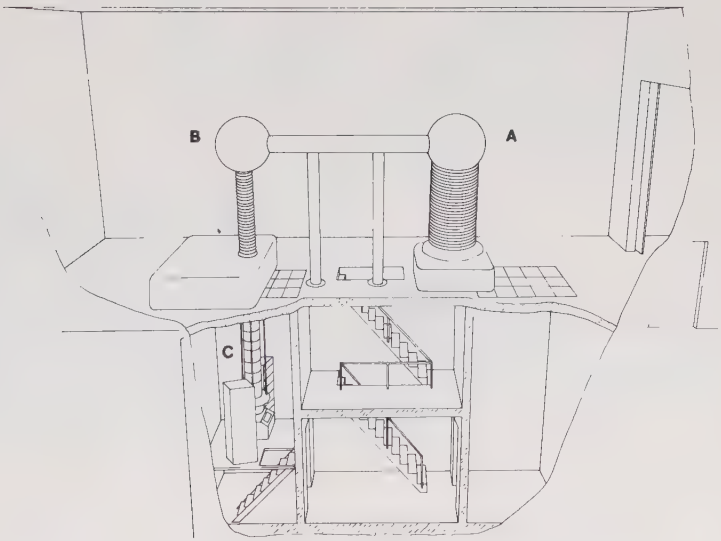


Abb. 1: Aufbau der 1,2 MV - Elektronenbeugungsanlage im Hochspannungslaboratorium, mit A: Hochspannungsgenerator, B: Beschleuniger und C: Elektronenbeugungssäule

Halle sind mit einer Metallfolie verkleidet und geerdet. Unter dem Fußbodenbelag, für den ein spezielles Material mit guter Leitfähigkeit ausgesucht wurde, liegt ein Kupfernetz, das direkt geerdet ist.

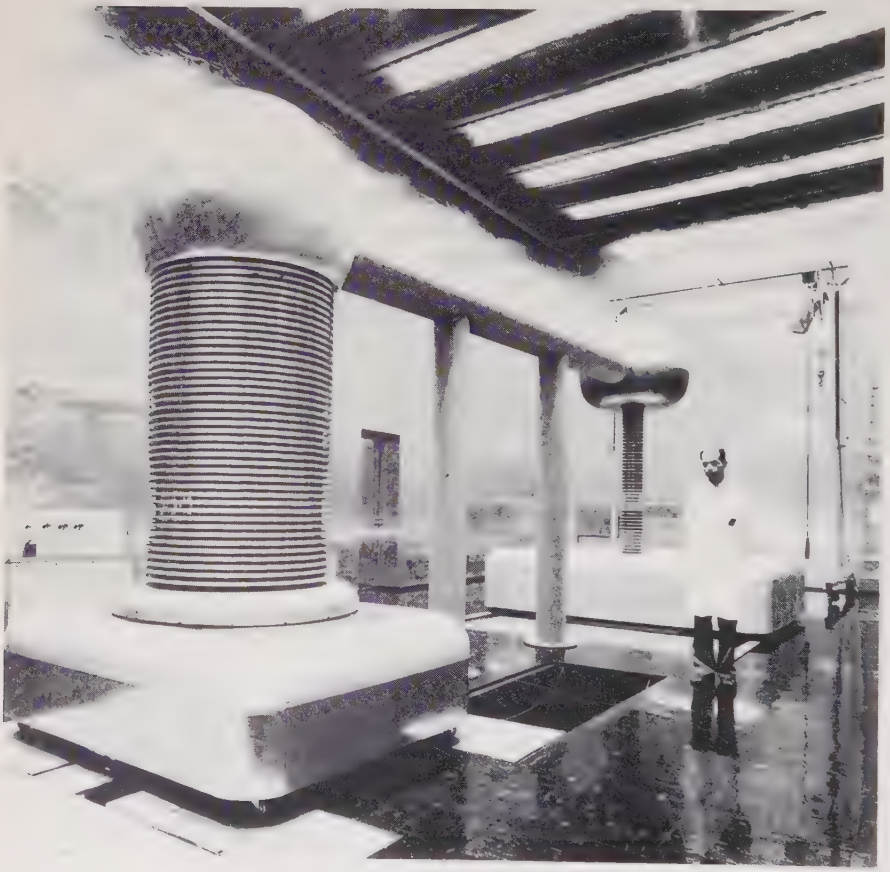


Abb. 2: Van de Graaff - Hochspannungsgenerator (A) im Vordergrund und Elektronenbeschleuniger (B) im Hintergrund in der Hochspannungshalle. Die abgebildete Person diene als Größenmaßstab.

Die Anlage gliedert sich in drei große Baugruppen (siehe Abb. 1). Diese sind:

A) Der Van de Graaff - Hochspannungsgenerator

B) Der Elektronenbeschleuniger, bestehend aus dem Beschleunigungsrohr und dem Elektronen - Injektionssystem

C) Die elektronenoptische Beugungssäule mit den Steuer - und Versorgungseinheiten

Der Hochspannungsgenerator (siehe A in Abb.1) ist auf dem Fußboden der Halle verankert. Über der in der Abb. 1 dargestellten linken Experimentiergrube ist eine etwa 1 t schwere Stahlplatte schwingungsgedämpft aufgehängt (siehe Abb. 3). Sie trägt sowohl den nach oben aufgebauten Elektronenbeschleuniger (siehe B in Abb. 1) als auch die in die Experimentiergrube hängende elektronenoptische Beugungssäule (siehe C in Abb. 1). Mit diesem Aufbau gelingt es, eine Übertragung von mechanischen Schwingungen auf die elektronenoptische Säule, die beim Betrieb des Hochspannungsgenerators entstehen, weitestgehend zu vermeiden. In die Experimentiergrube mußte eine von unten über eine Treppe erreichbare Arbeitsplattform eingebaut werden (siehe Abb. 1), die in verschiedenen Höhen aufgehängt werden kann. Für Montagearbeiten an der Anlage diente ein fahrbarer Portalkran mit 4,5 m lichter Höhe (siehe Abb. 2). Die ganze Anlage wird von der Arbeitsplattform in der Experimentiergrube aus, wo sich der Einblick auf den Endbildleuchtschirm befindet, bedient und gesteuert. Ein Betreten oder der Aufenthalt in der Halle ist während des Betriebes des Hochspannungsgenerators nicht zulässig.

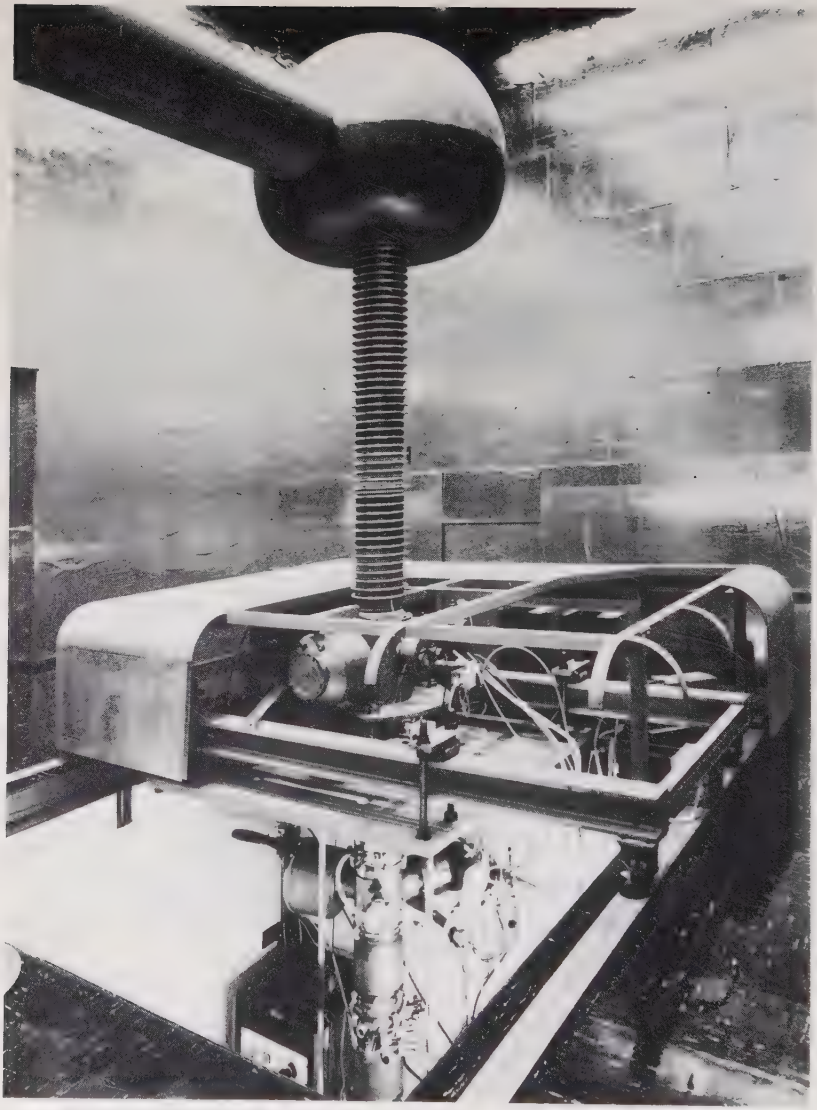


Abb. 3: Der Beschleuniger der 1,2 MeV - Elektronenbeugungsanlage. Unter der teilweise entfernten Verkleidung erkennt man die an einem fahrbaren Wagen aufgehängte, tragende Stahlplatte mit den Vakuumpumpen. In die geöffnete Experimentiergrube hängt die elektronenoptische Beugungssäule. Details des Beschleunigers zeigt die Abb. 5.

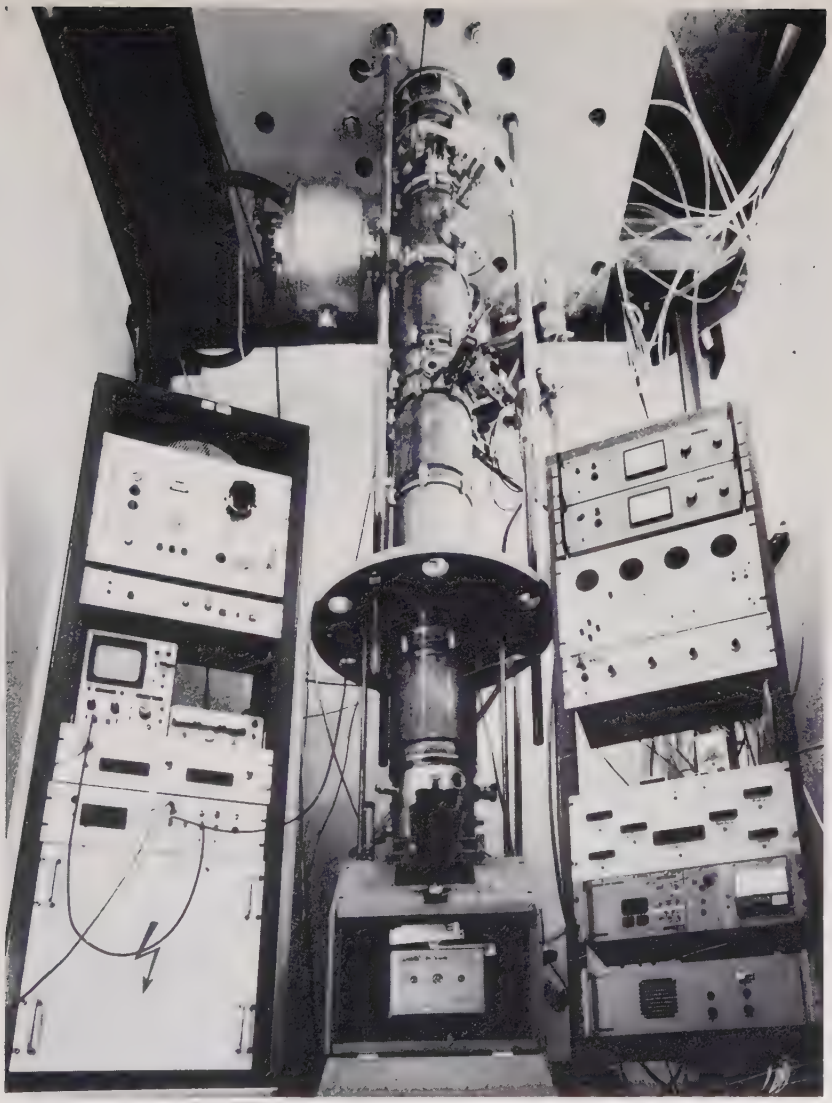


Abb. 4: Die elektronenoptische Beugungssäule in der Experimentiergrube. Die Rohrelemente sind mittels Klammerschrauben aneinander befestigt und über drei M30-Gewindestangen gegen die tragende Stahlplatte (oben im Bild) verspannt. In dem geöffneten Röntgenstrahlen-Abschirmgehäuse befindet sich die automatische Aufnahmekamera. Details der Beugungssäule zeigt die Abb. 13.

II.2 Der Van de Graaff - Hochspannungsgenerator

Die für die Beschleunigung der Elektronen erforderliche Hochspannung wird mit Hilfe eines Van de Graaff - Generators erzeugt. Bei diesem wird nach einem Vorschlag von Bailitis [2], anstelle des herkömmlichen, aus einem isolierenden Material bestehenden Bandes ein etwa 1600 m langer, 1,4 mm dicker, endlos geführter Polyamiddraht verwendet. Bei den dadurch möglichen hohen Umlaufgeschwindigkeiten von 50 m/sec erreicht man gegenüber konventionellen Van de Graaff - Generatoren eine zwei bis drei mal größere Stromstärke. Der Generator arbeitet in offener Bauweise in Luftatmosphäre. Er wurde gemeinsam mit der Firma Polymer-Physik GmbH&Co. KG, Tübingen, entwickelt und nach der Übernahme durch das Institut für Angewandte Physik der Universität Tübingen von G. Möllenstedt und H. Hiller weiter ausgebaut und verbessert. Nähere Angaben können der Dissertation von Hiller [3] entnommen werden.

Die vorliegende Arbeit umfaßt neben den in den Abschnitten III bis VI beschriebenen Untersuchungen zur Elektronenbeugung und zur Stabilisierung und Messung der Hochspannung die gesamte Entwicklung und den Aufbau des Elektronenbeschleunigers und der Elektronenbeugungssäule. Lediglich der Van de Graaff - Generator war zu Beginn der Arbeiten, über die hier berichtet wird, bereits vorhanden. Durch die Betriebsweise in offener Luftatmosphäre, die Gegebenheiten in der Hochspannungshalle und durch eine angestrebte eventuelle Integrierbarkeit des Beschleunigungsrohres in die Potentialteilersäule des Generators waren wesentliche Konstruktionsdaten für die Anlage vorgegeben.

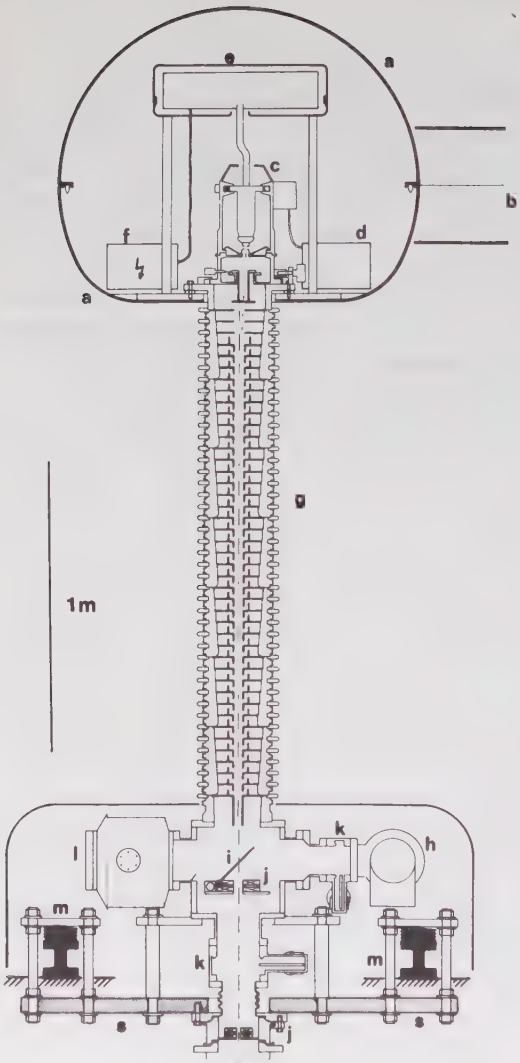
II.3 Der Elektronenbeschleuniger

II.3.a Übersicht

Der Elektronenbeschleuniger arbeitet nach dem Prinzip eines elektrostatischen Linearbeschleunigers. Von einem Injektionssystem werden 30 keV-Elektronen in das Beschleunigungsrohr eingestrahlt und in diesem durch die vom Van de Graaff - Generator gelieferte Spannung auf Energien bis über 1250 keV beschleunigt.

Das zentrale Bauelement des Beschleunigers stellt das Beschleunigungsrohr (siehe g in Abb. 5) dar. Es wird hochspannungsseitig durch das Injektionssystem (c bis f in Abb. 5) und durch die Hochspannungselektrode (a in Abb. 5) abgeschlossen. Weiterhin ist zum Beschleuniger die Anlage zur Erzeugung des erforderlichen Hochvakuums (siehe Abschnitt II.5) zu zählen.

Der gesamte Beschleuniger wurde bis auf wenige Teile, wie Glühemissions-Strahlkopf und Vakuumpumpen, in eigener Entwicklung hergestellt. Dazu waren umfangreiche Vorarbeiten erforderlich. So wurde, nachdem verschiedene Materialien auf ihre Vakuum- und Hochspannungs-Isolationstauglichkeit hin untersucht worden waren, ein vakuum-gießtechnisches Verfahren zur Herstellung von Beschleunigungsrohrsegmenten aus Epoxydharz entwickelt. Zur Dimensionierung der einzelnen Bauteile wurden numerische Berechnungen von Potential- und Feldverteilungen und von Elektronenbahnen durchgeführt. Ferner mußte das fernsteuerbare Injektionssystem entwickelt werden. Schließlich waren die elektronenoptischen Eigenschaften des Beschleunigers durch geeignete Variation der inneren Potentialteiler-Elektroden für die angestrebte Anwendung zu optimieren.



a zweiteilige Hochspannungselektrode

b Spannungszuführung vom Van de Graaff-Generator

c X- Y- verschiebbarer Glühemissionsstrahlkopf

d Infrarot-Empfänger und Steuerung der Kathodenverschiebung

e Heizstrom- und Wehneltspannungsversorgung

f Modul zur Erzeugung der Injektionsspannung

g Beschleunigungsrohr, bestehend aus sieben gegossenen Segmenten

h Turbomolekular-Pumpe

i Kontroll-Leuchtschirm

j magnetisches Doppelablenksystem

k elektro-pneumatische Pendelschieberventile

l Flüssig-Stickstoff - Pumpkörper mit Titansublimator

m schwingungsdämpfende Aufhängung der Anlage

s tragende Stahlplatte

Abb. 5: Schnitt durch den 1,2 MeV - Elektronen-Beschleuniger (siehe auch Abb. 3)

II.3. b Das Beschleunigungsrohr

Das Beschleunigungsrohr ist 1659 mm lang und ist, entsprechend dem Potentialteiler des Van de Graaff - Generators, in 42 Stufen mit jeweils 39,5 mm Höhe unterteilt. Dadurch wäre prinzipiell eine Integration des Beschleunigungsrohres in die Potentialteilersäule des Generators, wie man es häufig bei Drucktankanlagen vorfindet, möglich. Aus Gründen der mechanischen und elektrischen Stabilität, die im Kapitel III dargestellt sind, wurde hier auf eine solche Anordnung verzichtet. Der separate Aufbau des Beschleunigers hat aber zur Folge, daß man eine zweite Hochspannungselektrode und einen zweiten Potentialteilerwiderstand benötigt.

Das gesamte Beschleunigungsrohr besteht aus sieben Rohrsegmenten, in denen jeweils sechs Beschleunigungsstufen zusammengefaßt sind. Jedes der insgesamt sieben Segmente wurde in einem speziell entwickelten Vakuum-Gießverfahren hergestellt und vor dem Einbau in den Beschleuniger ausführlich getestet. Das Verfahren, bei dem ein Rohrsegment (siehe Abb. 6 und 7) in einem einzigen Vorgang gegossen wird, konnte nach anfänglichen Schwierigkeiten (zwei der ersten Gießlinge waren nicht voll funktionstüchtig) weitestgehend perfektioniert werden. Zum Einsatz kam ein heißhärtendes ARALDIT - Gießharzsystem der Ciba - Geigy AG. Folgende Zusammensetzung (Angaben in Gewichtsteilen) hat sich als am geeignetsten erwiesen:

Harz	Härter	Flexibilisator	Beschleuniger	Füllstoff
ARALDIT F	HY 905	DY 040	DY 061	Quarzmehl W12
100	100	15	0,25	380

Die Gießmasse muß, ihrer hohen Viskosität wegen, bei 80 °C verarbeitet werden. Die Härtung erfolgt bei einer langsam von 60 °C auf 100 °C ansteigenden Temperatur über 70 Stunden. Nähere Details können der Diplomarbeit des Verfassers [4] entnommen werden.

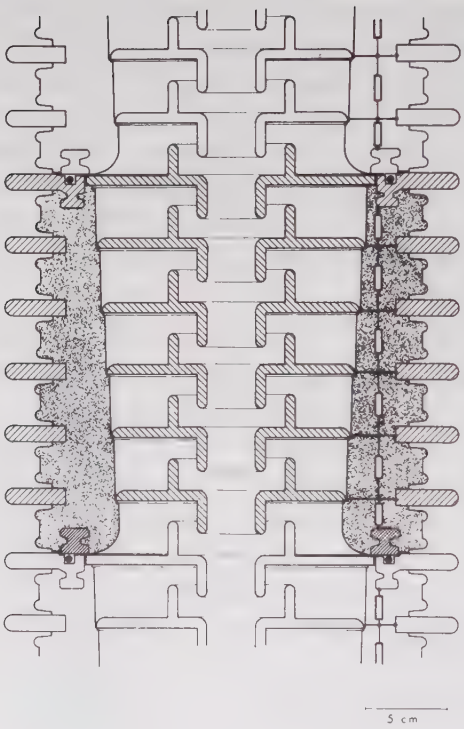


Abb. 6: Schnitt durch eines der sieben Segmente des Beschleunigungsrohres. An beiden Enden sind Metalldichtflächen für die Viton-Dichtungen eingegossen. Ebenfalls in die Gießmasse eingelagert sind die äußeren Potentialteiler-Elektroden, die Potentialteiler-Widerstände und die Durchführungen zu den inneren Elektroden.

Die Beschleunigungselektroden im Inneren des Rohres sind aus einer gut polierbaren Aluminium-Legierung hergestellt und werden auf der abgestuften Rohrinnenwand lediglich aufgelegt. Dadurch

ist in Störfällen eine leichte Wartungsmöglichkeit gegeben. Wie die Abb. 6 zeigt, bilden die inneren Elektroden ein Rohrlinsensystem, das so ausgelegt ist, daß der Elektronenstrahl von keiner Stelle seiner Bahn aus die Isolatoroberfläche direkt sieht. In die aus der Epoxydharz-Gießmasse bestehende Rohrwand ist der ohmsche Potentialteilerwiderstand fest eingegossen. Pro Beschleunigungsstufe liegen fünf Kolloid-Kohleschicht - Hochspannungswiderstände vom Typ RCLT 1 der Firma electronic GmbH, München, mit jeweils 100 MΩ in Reihe. Sie lassen eine Dauerbetriebsspannung von 35 kV und eine Spitzenspannung von 50 kV pro Stufe zu. Die höchste mit der Gesamtanlage erreichbare Spannung liegt zwischen 1250 kV und 1300 kV. Daraus ergibt sich für eine Stufe etwa 30 kV. Der ohmsche Gesamtwiderstand des Potentialteilers im Beschleunigungsrohr beträgt 21 GΩ . Über eine genauere Eichung desselben wird in Kapitel III berichtet.

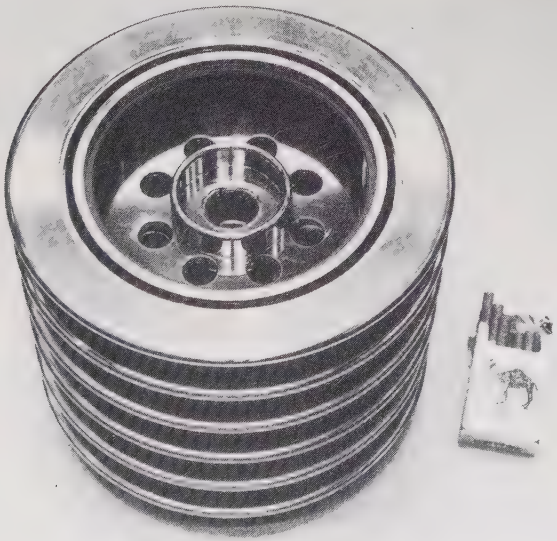


Abb. 7: Gegossenes Beschleunigungsrohrsegment mit eingesetzter innerer Elektrode

II.3.c Die Hochspannungselektrode des Beschleunigers

Auf dem Beschleunigungsrohr ist die Hochspannungselektrode des Beschleunigers gehaltert (siehe a in Abb. 5). In ihr ist das ferngesteuerte Elektronenstrahl - Injektionssystem untergebracht. Die Elektrode besteht aus einer oberen halbkugelförmigen Aluminiumschale von 62,5 cm Radius und einer abgeflachten, aus glasfaserverstärktem Polyesterharz hergestellten unteren Halbschale, die mit einem leitfähigen Lack überzogen ist. Mit Hilfe eines Kranes läßt sich die Hochspannungselektrode durch Abheben der Aluminiumhalbkugel leicht öffnen, was zum Aufladen der Versorgungsakkumulatoren des Injektionssystems regelmäßig erforderlich ist.

Die Maximalspannung, die mit dem Beschleuniger erreicht werden kann, ist dann gegeben, wenn an irgend einer Stelle die Durchbruchfeldstärke überschritten wird. Bei einer an Luftatmosphäre arbeitenden Anlage ist wegen des hohen Isolationsvermögens des im Beschleunigungsrohr vorhandenen Hochvakuums damit zu rechnen, daß sich diese Stelle auf der Außenfläche befindet. Aus diesem Grunde wurde unter Zuhilfenahme von numerischen Berechnungen des elektrischen Feldes versucht, die äußere Geometrie des Beschleunigers zu optimieren. Einige wesentliche Daten waren dabei allerdings durch die angestrebte Anpassung an den Van de Graaff - Generator vorgegeben. Ferner war zu Beginn der Arbeiten die die Hochspannungselektrode nach oben abschließende Aluminium-Halbkugel bereits vorhanden. Sie wurde schon im Rahmen des Aufbaus des Van de Graaff - Generators hergestellt. Aus Optimierungsüberlegungen, bei denen man die Hochspannungselektrode und die sie umgebenden Wände des Labors als einen Kugelkondensator betrachtet, ergibt sich, daß für eine vorgegebene Spannung die Feldstärke an der Hochspannungselektrode etwa bei dem verwendeten Radius von 62,5 cm minimal wird.

Die durchgeführten Berechnungen der Potential- und Feldverteilungen beruhen auf der Lösung der Laplace-Gleichung mit Hilfe des Liebmannschen Maschenverfahrens. Hierfür erforderliche, wesentliche Programmteile wurden im Rahmen einer von F. Lenz mit Programmierübungen gehaltenen Vorlesung [5] erstellt. Da nur

die Feldstärken direkt am Beschleuniger von Interesse sind, ist es eine zulässige Näherung, die Randbedingungen so zu wählen, daß sich eine rotationssymmetrische Problemstellung ergibt. Drei der vier Wände der Hochspannungshalle haben jeweils einen Abstand von etwa 4 m zur Achse des Beschleunigungsrohres (siehe Abb. 1). Anstatt auf diesen Wänden wird das Potential auf einem zum Beschleuniger koaxialen Zylinder gleich Null angenommen, dessen Radius 4 m beträgt. Um einerseits die großen Abmessungen der Hochspannungshalle und andererseits auch noch genau genug die Form der Potentialteilerelektroden erfassen zu können, wurden abgestufte Maschenweiten von 100 mm bis herunter zu 1 mm verwendet.

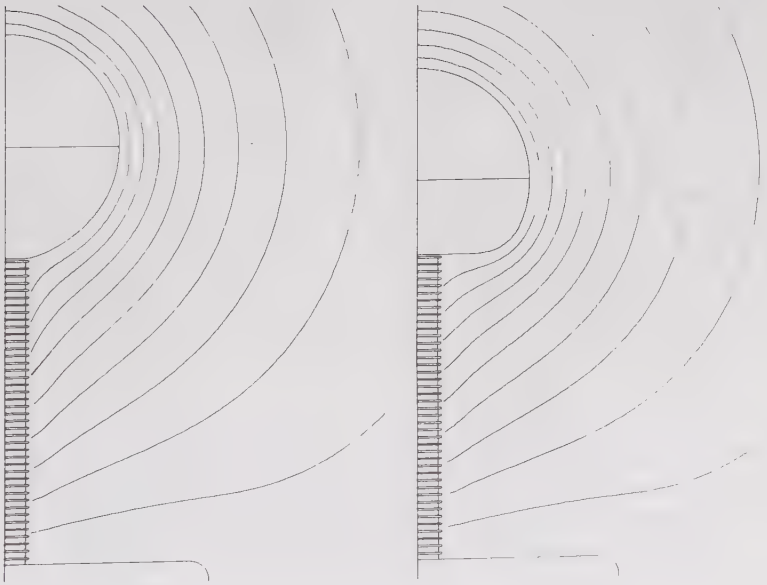


Abb. 8: Numerisch berechnete Potentialverteilungen am Beschleuniger für zwei verschiedene Formen der Hochspannungselektrode. Die Äquipotentiallinien sind in Stufen von 1/10 des Gesamtpotentiales dargestellt.
a) kugelförmige Hochspannungselektrode
b) abgeflachte Elektrode

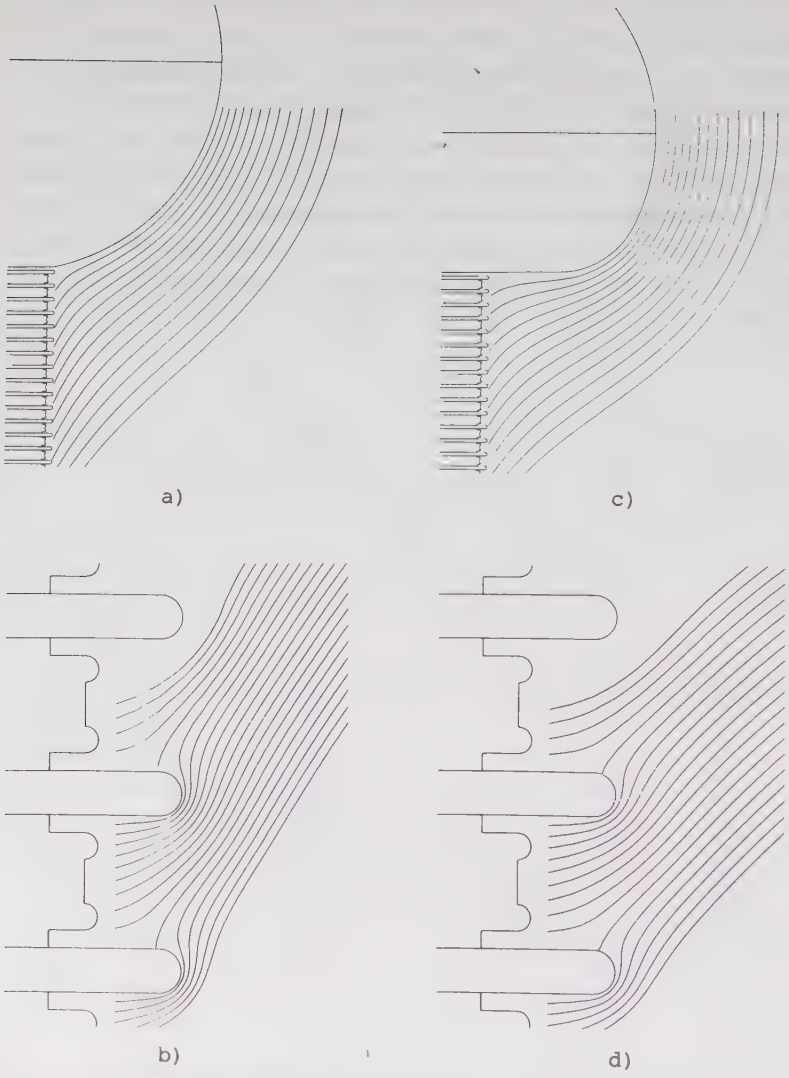


Abb. 9: Mit feinen Maschenweiten berechnete Ausschnitte aus den Potentialverteilungen der Abb. 8 an der Hochspannungselektrode und an den Potentialteilerelektroden 36 und 37 (von unten an gezählt)
a) und b) für die kugelförmige Hochspannungselektrode
c) und d) für die abgeflachte Elektrode

Die ersten Berechnungen wurden für eine vollkommen kugelförmige Hochspannungselektrode durchgeführt. In den Abb. 8a, 9a und 9b ist die zugehörige Potentialverteilung dargestellt. Die Äquipotentiallinien laufen bei der 36. und 37. Stufe (von unten an gezählt) am steilsten an das Beschleunigungsrohr heran.

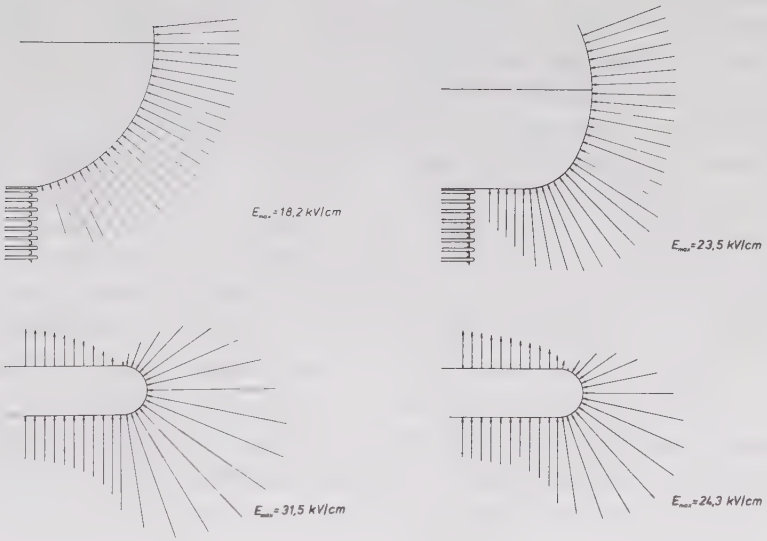


Abb. 10: Elektrische Feldstärken an der Oberfläche der Hochspannungselektrode und an den Potentialteilerelektroden Nr. 36 und 37 bei einer Betriebsspannung von 1 MV
a) kugelförmige- b) abgeflachte Hochspannungselektrode

Zusätzlich wurden die bei einer Betriebsspannung von 1 MV an diesen Potentialteilerelektroden und an der Hochspannungselektrode auftretenden Feldstärken berechnet. Sie sind in der Abb. 10a dargestellt. Während die maximale Feldstärke an der Hochspannungselektrode nur 18,2 kV/cm beträgt, erreicht sie an den Potentialteilerelektroden Nr. 36 und 37 den Wert von 31,5 kV/cm. Er übersteigt den Grenzwert für die Durchbruchfeldstärke in

Luftatmosphäre von 28 - 30 kV/cm, so daß eine stabile Arbeitsweise bei der projektierten Maximalspannung von 1 MV nicht zu erwarten war. Die Feldstärken an der 36. und 37. Potentialteilerelektrode weichen nur sehr wenig voneinander ab. In der Abb. 10 ist sie daher jeweils nur für eine Elektrode dargestellt.

Die Form der Potentialteilerelektroden des Beschleunigers wurde schon bei der Entwicklung des in Abschnitt II.3.b erwähnten Gießverfahrens optimiert, und konnte daher kaum geändert werden. Es zeigte sich aber, daß auch durch eine Variation der Form der Hochspannungselektrode eine Senkung der an den Potentialteilerelektroden auftretenden Feldstärken erreicht werden konnte. Mit zunehmender Abflachung der unteren Halbschale der Hochspannungselektrode werden an der Stelle der stärksten Krümmung die Äquipotentiallinien mehr und mehr zusammengedrängt (siehe Abb. 9c) was eine Zunahme der Feldstärke an dieser Stelle bedeutet. Gleichzeitig laufen aber die Äquipotentiallinien immer weniger steil an das Beschleunigungsrohr heran, sodaß dort die Feldstärke sinkt. Wie in den Abb. 8b, 9c, 9d und 10b dargestellt, konnte auf diese Weise eine Anordnung gefunden werden, für die die Feldstärken bei 1 MV mit 24,3 kV/cm an den Potentialteilerelektroden und 23,5 kV/cm an der Hochspannungselektrode etwa gleich groß sind und noch deutlich unterhalb der Durchbruchfeldstärke liegen.

Die in der Abb. 5 dargestellte untere Hälfte der Hochspannungselektrode wurde exakt nach den so ermittelten Daten von der Firma Hähl, Dußlingen, aus glasfaserverstärktem Polyesterharz hergestellt und anschließend mit einer leitfähigen Lackierung versehen.

II.3.d Das Elektronenstrahl - Injektionssystem

Innerhalb der Hochspannungselektrode des Beschleunigers befindet sich das ferngesteuerte Elektronenstrahl - Injektionssystem, das einen Elektronenstrahl konstanter Energie in das Beschleunigungsrohr einschießt. Die Injektionsspannung beträgt 30,0 kV. Sie wird innerhalb der Hochspannungselektrode von einem aus Akkumulatoren gespeisten Hochspannungsmodul erzeugt. Das Injektionssystem arbeitet völlig unabhängig vom Van de Graaff - Generator. Dieses Verfahren ist gegenüber einer Versorgung des Injektors aus der vom Generator gelieferten Spannung, wegen der zusätzlich erforderlichen Hochspannungserzeugung im Innern der Hochspannungselektrode und der damit verbundenen aufwendigeren Steuerung des Injektionssystems, komplizierter. Es hat aber entscheidende Vorteile:

1) Ohne daß der Van de Graaff - Generator betrieben werden muß, also bei auf Erdpotential befindlicher Hochspannungselektrode, kann das Injektionssystem justiert und getestet werden.

2) Bei einer Änderung der Gesamtbeschleunigungsspannung bleiben die Betriebsdaten des Injektionssystems konstant. Dadurch wird insbesondere das unbeabsichtigte Auftreten hoher Strahlströme und die damit verbundene Objektschädigung oder auch starke Emission von Röntgenstrahlen vermieden.

3) Mit dem entwickelten Fernsteuersystem ist es leicht möglich, die Injektionsspannung während des Betriebes zu variieren. Dadurch können die elektronenoptischen Eigenschaften der Beschleunigungsstrecke gezielt beeinflußt werden (siehe dazu Abschnitt II.3.e).

4) Die Versorgungs- und Steuereinheit des Injektionssystems enthält empfindliche elektronische Bauelemente, wie zum Beispiel hochintegrierte Fernsteuerungs-Schaltkreise. Diese sind durch den genannten Aufbau gut gegenüber im Hochspannungsgenerator und in der Beschleunigungsstrecke auftretenden Überschlägen geschützt. Dies hat sich im Laufe der durchgeführten Experimente bestätigt: Auch bei 1,3 MV -

Überschlägen blieb das gesamte Injektionssystem voll funktionsfähig.

Das Elektronenstrahl - Injektionssystem besteht aus einem ELMISKOP 101 - Glühemissionsstrahlkopf der Firma Siemens, der mit einer motorbetriebenen Kathodenverschiebung ausgestattet ist, und den speziell entwickelten Steuer- und Versorgungseinheiten.

Die Anode und das Gehäuse des ELMISKOP - Strahlkopfes liegen zusammen mit der Hochspannungselektrode des Beschleunigers auf der vom Van de Graaff - Generator erzeugten Hochspannung. Die Strahlkopfversorgung gliedert sich in zwei Funktionseinheiten. Die Einheit I (oberer gestrichelt umrandeter Block in Abb. 11) beinhaltet die Heizstrom- und die Wehneltspannungsversorgung. Sie kann gegenüber der Anode auf bis zu -30 kV gelegt werden und ist in einem geschlossenen Metallkasten, der innerhalb der Hochspannungselektrode isoliert aufgestellt ist (e in Abb. 5 und

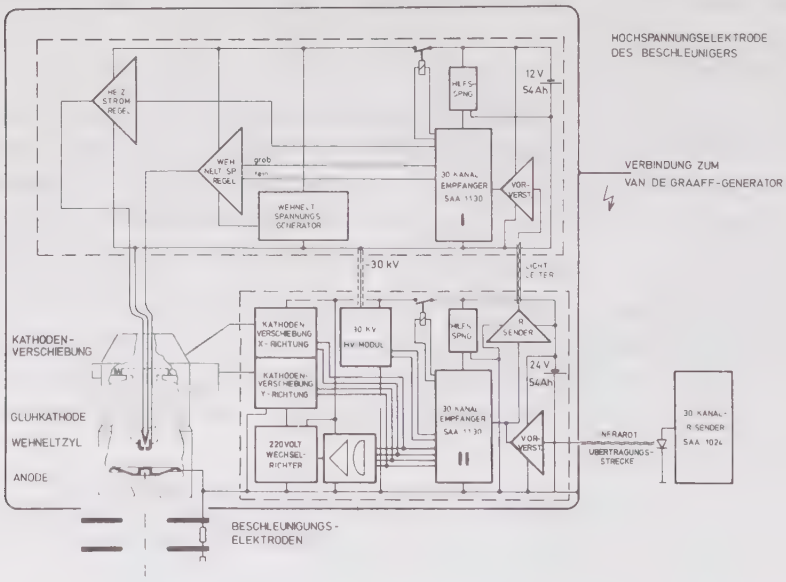


Abb. 11: Funktionsschaubild des Elektronenstrahl-Injektionssystems in der Hochspannungselektrode des Beschleunigers mit dem ELMISKOP 101 Glühemissions-Strahlkopf und der Infrarot-Fernsteuerung

Abb. 12), untergebracht. Eine zweite Funktionseinheit II (unterer gestrichelt umrandeter Bereich in Abb. 11) befindet sich auf dem Potential des Strahlkopfgehäuses. Zu ihr gehört neben der Ansteuerung der Motoren der X, Y - Kathodenverschiebung das Bauelement, das die Injektionsspannung erzeugt (f in Abb. 5). Es ist dies ein nach dem Kaskadenprinzip arbeitendes, programmierbares Hochspannungsmodul der Firma Spellman, New York, vom Typ WRM 30 N - 30 KD. Es arbeitet mit 24 Volt Gleichspannung am Eingang und liefert bei der gegebenen Anwendung - 30 kV mit einer Welligkeit von 0,01 Prozent. Die beiden Funktionseinheiten des Injektionssystems werden aus Bleiakkumulatoren versorgt, zu deren Nachladen jeweils die obere Hälfte der Hochspannungselektrode mit Hilfe des Kranes abgehoben werden muß.

Sämtliche Funktionen innerhalb der Hochspannungselektrode werden über zwei ICs SAA 1130 geschaltet. Diese stellen Empfänger- und Decodierbausteine eines Fernbedienungssystems dar, das es erlaubt, den Injektor bei voll arbeitender Anlage von der Experimentiergrube aus zu steuern. Der IC SAA 1130 wurde von der Firma ITT in Kombination mit dem Sende- und Codier-IC SAA 1024 für den Einsatz in kommerziellen TV - Fernbedinungen konzipiert, wobei 30 verschiedene Steuerbefehle durch 30 Ultraschallfrequenzen zwischen 33,9 kHz und 44 kHz übermittelt werden können. Die Übertragung von Ultraschallsignalen in die geschlossene Hochspannungselektrode hatte sich aber als zu störanfällig erwiesen und mußte durch eine gerichtete Infrarotübertragungsstrecke ersetzt werden. Diese besteht aus einer an der Wand der Halle installierten Infrarot-Leuchtemitterdiode und aus einem Infrarot-Phototransitor, der hinter einem metallisierten Fenster in der Hochspannungselektrode angebracht ist.

Beide Empfänger-Ics SAA 1130, die sich bei eingeschalteter Injektionsspannung auf um 30 kV auf unterschiedlichen Potentialen befinden, werden von nur einem Sende-IC SAA 1024 angesteuert. Dazu ist es erforderlich, daß innerhalb der Hochspannungselektrode das von dem zur Einheit II gehörenden Phototransistor empfangene Signal über einen Kabellichtleiter auch auf den Empfänger I weitergegeben wird. Die Regelung des Heizstromes und der Wehneltspannung (grob und fein) erfolgt über die drei Analog-Ausgänge des SAA 1130 in Funktionseinheit I, die

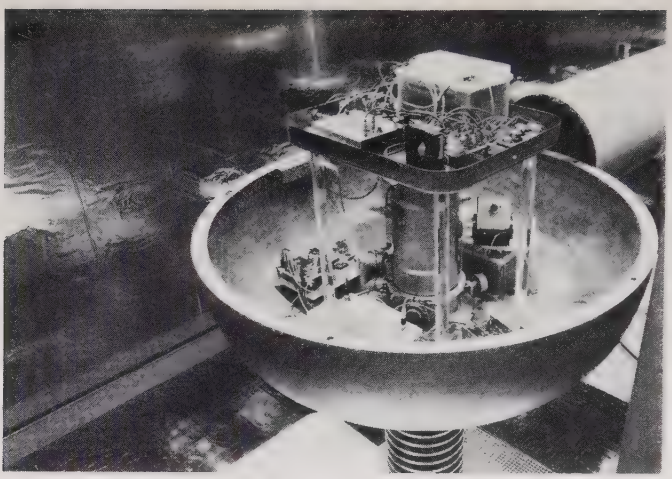


Abb. 12: Das ferngesteuerte Elektronenstrahl - Injektionssystem im Innern der geöffneten Hochspannungselektrode des Beschleunigers. In dem oberen, ebenfalls geöffneten Metallkasten befinden sich die Heizstrom- und Wehneltspannungsversorgung.

von den Steuerbefehlen 2 bis 13 angesprochen werden. Sämtliche Schaltvorgänge in der Funktionseinheit II sind so an den dortigen Empänger-IC angeschlossen, daß sie nur von den Steuerbefehlen 16 bis 30 abhängen. Auf diese Weise können sämtliche Funktionen des Injektionssystems unabhängig voneinander mit nur einem Sender gesteuert werden. Auf die Befehle 1 und 15 sprechen beide Empfänger simultan an. Mit Befehl 15 wird das Injektionssystem in Betriebsbereitschaft versetzt. Durch den Befehl 1 wird es soweit ausgeschaltet, daß nur noch die Empfänger-ICs bei minimalem Stromverbrauch arbeiten. In die Funktionseinheit I ist, um unbeabsichtigte hohe Strahlströme zu vermeiden, eine Sicherheitsschaltung integriert, die bei Unterschreitung eines einstellbaren Wertes, oder auch bei völligem Ausfall der Wehneltspannung, den Heizstrom abschaltet.

Die Schaltkreise der Heizstrom- und Wehneltspannungsregelung sowie der Fernsteuerung wurden von F. Gensler [6] für eine 300 kV - Elektronenbeugungsanlage entwickelt, und konnten dankenswerterweise übernommen werden.

II.3.e Elektronenoptische Eigenschaften des Beschleunigers

Folgende elektronenoptischen Eigenschaften des Beschleunigers wurden angestrebt:

1) Für einen Arbeitsbereich von 200 kV bis 1 MV und darüber hinaus soll der Elektronenstrahl möglichst gut entlang der optischen Achse aus dem Beschleuniger austreten.

2) Der Elektronenstrahl soll so scharf gebündelt sein, daß für eine gleichmäßige Ausleuchtung von Blenden mit Durchmessern bis zu 0,5 mm möglichst wenig schnelle Elektronen ausgeblendet werden müssen.

3) Im gesamten Spannungsbereich muß gewährleistet sein, daß auch beim Justieren der Kathodenverschiebung des Injektionsstrahlkopfes keine beschleunigten Elektronen auf die Metallelektroden im Beschleunigungsrohr prallen und dabei unkontrollierte Emission von Röntgenstrahlen bewirken können.

4) Der Beschleuniger soll im ganzen Spannungsbereich ein virtuelles Bild des vom Injektionsstrahlkopf erzeugten cross-overs liefern. Dies ist notwendig, um bei den regelmäßig mittels Debye-Scherrer-Beugungsaufnahmen durchzuführenden Überprüfungen der Hochspannungsmessung einen Lebedeffschen Strahlengang realisieren zu können.

Die geforderten Eigenschaften werden durch die Daten des Injektionssystems und des Beschleunigungsrohres vorgegeben und können durch geeignete Wahl dieser Daten beeinflußt werden.

Die Elektroden im Innern des Beschleunigungsrohres stellen ein System von hintereinandergeschalteten Rohrlinsen dar. Insgesamt kann der Beschleuniger in der beschriebenen Form als eine schwache elektrostatische Linse betrachtet werden, deren Brechkraft von der Einschußenergie und der von den Elektronen insgesamt erreichten kinetischen Energie abhängig ist. Im wesentlichen wird die Brechkraft neben der Einschußenergie nur durch die Daten der ersten Beschleunigungsstufen, in denen die Elektronen noch relativ langsam sind, gegeben.

Wegen des offenen Aufbaues der Anlage an Luftatmosphäre greifen Magnetfelder praktisch unabgeschwächt in das Beschleunigungsrohr hinein und beeinflussen dort die Elektronenbahnen. Von einer Verwendung abschirmenden Materiales bei der Herstellung der Beschleunigungselektroden wurde wegen des hohen dazu erforderlichen Aufwandes bisher abgesehen. Wie durchgeführte Berechnungen * der Elektronenbahnen und spätere Experimente gezeigt haben, werden die Elektronen durch das Erdmagnetfeld so stark abgelenkt, daß bei axialem Einschuß des Elektronenstrahles in das Beschleunigungsrohr für alle Spannungen bis 1 MV die Bahnen auf den Metallelektroden enden. Die den Rechnungen zugrundegelegte Elektrodenform ist in der Abb. 17 dargestellt. Nur dadurch, daß der Injektionsstrahl unter einem Winkel von 0,05 rad und um 10 mm außeraxial in das Beschleunigungsrohr einläuft kann erreicht werden, daß die Elektronen nicht auf Elektroden treffen und bei Spannungen ab etwa 300 kV auch axial aus dem Beschleuniger austreten. Der hierfür erforderliche Aufbau des Injektionssystemes ist in der Abb. 5 angedeutet.

---

* Da im Beschleunigungsrohr sowohl elektrische aus auch magnetische Felder vorhanden sind, mußten die Elektronenbahnen aus der Lorentzschen Bewegungsgleichung berechnet werden. Nach Kasper [7] ist es wegen der ungeeigneten Zeitskala günstig, diese mit der Parameterwahl $\tau = \sqrt{2m_o eE_o^*}\,/m$ in die folgende Form zu bringen:

$$\frac{d^2\vec{r}}{d\tau^2} = \frac{1}{2E_o^*}\left(\nabla\phi^*(\vec{r}) - \sqrt{\frac{2eE_o^*}{m_o}}\cdot\frac{d\vec{r}}{d\tau} \times \vec{B}\right)$$

Wählt man $E_o^* = E_o\cdot(1 + e/(2m_oc^2)\cdot E_o)$ als das asymptotisch erreichte, relativistisch korrigierte Beschleunigungspotential und $\phi^*(\vec{r})$ als das relativistisch korrigierte Beschleunigungspotential an der Stelle $\vec{r}$, dann ergibt der Energiesatz die Anfangsbedingung $(d\vec{r}/d\tau)^2 = \phi^*(\vec{r})/E_o^*$. Zur Lösung wird die obige Differentialgleichung in ein System von 6 gekoppelten Differentialgleichungen 1. Ordnung überführt und mit Hilfe des von Kasper angegebenen Fortran-Unterprogramms HPCK [8] integriert.

Der Elmiskop - Strahlkopf kann auf einem Verschiebetisch um bis zu 20 mm gegen die optische Achse des Beschleunigers verschoben werden. 180 mm unterhalb der Anodenbohrung ist eine in X- und Y-Richtung justierbare Blende angeordnet. Durch die Lagen der Anode des Strahlkopfes und dieser Blende ist die Einschußrichtung in das Beschleunigungsrohr fest vorwählbar. Der Durchmesser der auswechselbaren Blende legt die Apertur des Injektionsstrahles fest. Über diese Apertur, die je nach Anwendung zwischen $1 \cdot 10^{-3}$ und $5 \cdot 10^{-3}$ rad gewählt wird, ist der Querschnitt des aus dem Beschleuniger austretenden Elektronenbündels beeinflußbar. Mittels zweier Kontroll-Leuchtschirme (siehe i in Abb. 5 und o in Abb. 13) konnte beobachtet werden, daß der Strahl bei 1 MV nahezu vollständig parallel aus dem Beschleuniger austritt und, bei den oben angegebenen Aperturen des Injektionsstrahles, einen Durchmesser zwischen 0,2 mm und 1 mm aufweist. Durch die feste Vorgabe der möglichen Einschußrichtung in das Beschleunigungsrohr und durch die Beschränkung der Apertur kann mit Sicherheit vermieden werden, daß die Elektronen unkontrolliert auf Beschleunigungselektroden treffen. Vom Strahlkopf in unerwünschte Richtungen abgegebene Elektronen können schon bei kleinen Energien (30 keV), wo noch keine Probleme mit der Abschirmung von Röntgenstrahlen auftreten, ausgeblendet werden. Die Justierung des Injektionsstrahles in die durch die mechanische Lage des Strahlkopfes und der Blende vorgegebene Richtung erfolgt durch Verschieben der Kathode des Strahlkopfes in X- und Y - Richtung über dessen ferngesteuerte Motoren.

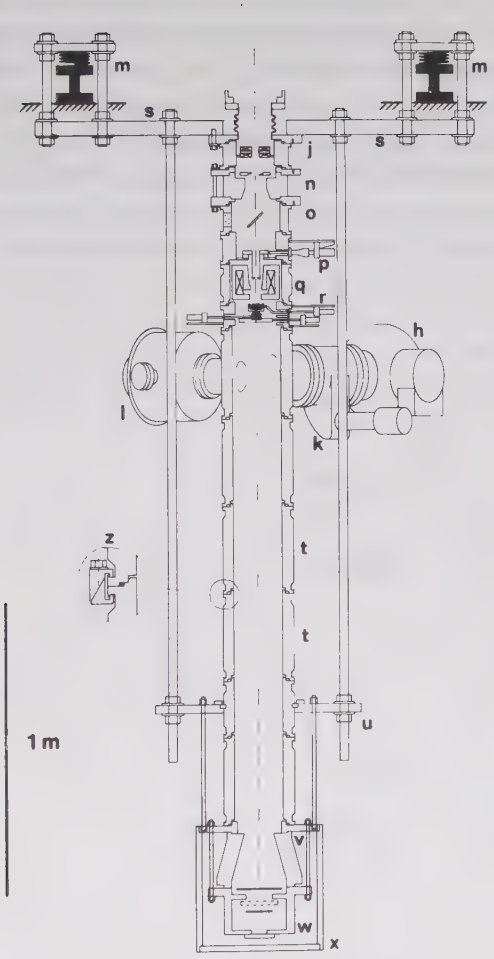
Wie die Abb. 5 zeigt, haben die obersten drei Elektroden im Beschleunigungsrohr nicht die in der Abb. 17 dargestellte Form, sondern es wurden drei rein lochblendenartige Elektroden eingesetzt. Dies war erforderlich, weil sich bei der ursprünglich für diese Elektroden verwendeten Form (siehe Abb. 17) ab etwa 500 kV eine zu große Brechkraft des Beschleunigungssystems ergab, und dadurch bei dem gegebenen Aufbau der Beugungssäule keine scharfen Debye-Scherrer- oder Punkt- Beugungsdiagramme mehr erhalten werden konnten.

II.4 Die elektronenoptische Beugungssäule

II.4.a Übersicht

Die elektronenoptische Beugungssäule ist hängend an der in Abschnitt II.1 beschriebenen, schwingungsgedämpft gelagerten Stahlplatte angebracht (siehe Abb. 13). Da der Beschleuniger ebenfalls auf dieser Platte aufgebaut ist, erhält man für die Gesamtanordnung der Beugungsanlage, die eine Höhe von über 6 m hat, eine von Verwindungskräften freie Aufhängung. Durch das hohe Gewicht der Beugungssäule und der die Aufnahmekamera umgebenden Röntgenstrahl – Abschirmung liegt der Schwerpunkt des Aufbaus weit unterhalb der Aufhängungspunkte.

Sämtliche Bauelemente sind in einer der Gesamtgröße des Beugungsrohres angepassten, speziell konzipierten Norm ausgeführt (siehe z in Abb. 13) und können dadurch beliebig ausgetauscht werden. Sie sind mittels Klammerschrauben oder Pratzen gegeneinander verschraubt. In Anlehnung an die bekannten Aufbauten der Höchstspannungs - Elektronenmikroskopie wurden die Bauelemente größer als bei den im Institut üblichen Geräten dimensioniert. Der Standard-Aussendurchmesser des Rohres beträgt 240 mm und die Wandstärken liegen zwischen 40 mm und 60 mm (siehe Abb. 13). Die ganze Säule wird durch drei M30-Gewindestangen und eine 30 mm starke Stahlplatte (u in Abb. 13) gegen die tragende Platte verspannt.



h Turbomolekular-Pumpe

j magnetisches Doppelablenksystem

k elektro-pneumatisches Pendelschieberventil

l Flüssig-Stickstoff - Pumpkörper mit Titansublimator

m schwingungsdämpfende Aufhängung der Anlage

n magnetisch betätigter Belichtungsverschluß

o Zwischenleuchtschirm

p motorgesteuerter X, Y-Verschiebetisch mit in die Linse hängendem Blendenrüssel

q magnetische Elektronenlinse

r motorgesteuerte Objekthalterung mit X,Y,Z-Verschiebung und Kippung um zwei Achsen

s tragende Stahlplatte

t Abstands-Rohrelemente

u Verspann-Vorrichtung

v Endbild-Leuchtschirm

w automatische Aufnahmekamera für Photoplatten

x schweres Röntgenstrahl-Abschirmgehäuse mit Bleiglasfenster

z Flanschsystem mit Klammerschrauben

Abb. 13: Schnitt durch die elektronenoptische Beugungssäule (siehe auch Abb. 4)

II.4.b Aufbau für Beugung im konvergenten Bündel

Außer für die im Kapitel III beschriebenen Messungen der Hochspannungsstabilität ist die elektronenoptische Beugungssäule aufgebaut für Elektronenbeugungsexperimente "im konvergenten Bündel". Bei dieser erstmals von Kossel und Möllenstedt [35] verwendeten Beugungsmethode wird das zu untersuchende Objekt anstatt mit dem üblichen, nahezu parallelen Strahl mit einem konvergenten Elektronenbündel durchleuchtet, das man mit Hilfe einer Elektronenlinse erzeugt. Der Öffnungswinkel des Bündels ist

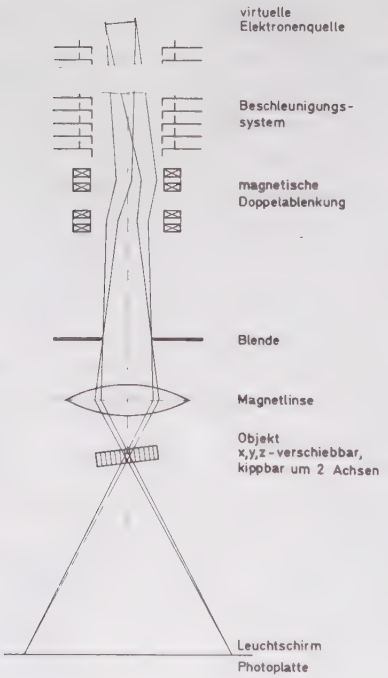


Abb. 14: Strahlengang in der 1,2 MV Elektronen - Beugungsanlage bei der Beugung im konvergenten Bündel nach Kossel und Möllenstedt

bestimmt durch die Brechkraft der Linse und den Durchmesser einer etwa parallel beleuchteten Blende, die so angeordnet ist, daß sie durch die Linse in die Beobachtungsebene abgebildet wird. Der zu untersuchende Kristall wird an den Ort des engsten Strahlquerschnittes gebracht. Je kleiner dieser Querschnitt ist, umso einfacher ist es, auf dem Objekt einen fehlerfreien Einkristallbereich zu finden. Der Strom durch die Elektronenlinse ist prinzipiell durch die geforderte Abbildung der Blende in die Beobachtungsebene festgelegt. Nachdem das Objekt mechanisch vorjustiert ist, wird er aber geringfügig variiert, um den engsten Strahlquerschnitt exakt in den zu untersuchenden Kristallbereich zu legen. Der Durchmesser der Blende wird so gewählt, daß der Öffnungswinkel des konvergenten Bündels etwa dem doppelten Bragg-Winkel des betrachteten Beugungsreflexes entspricht. Bei den hier beschriebenen Untersuchungen lagen diese Winkel zwischen $1 \cdot 10^{-3}$ und $5 \cdot 10^{-3}$ rad. Eine genauere Diskussion des Messverfahrens der "Beugung im konvergenten Bündel" erfolgt in den Kapiteln IV bis VI.

II.4.c Elektromagnetische Linse, Objekthalterung und Blende

Zur Erzeugung des konvergenten Bündels wird die Zwischenlinse eines Siemens ELMISKOPES 101 verwendet. Um einen ausreichend geringen Abstand Linse - Objekt und damit ausreichend große Öffnungswinkel des Bündels zu erreichen, muß sie auf dem Kopf stehend betrieben werden. Sie ist dazu in einem für die Gesamtsäule passenden Gehäuse (siehe q in Abb. 13) untergebracht. Ihre Spaltweite beträgt 12,0 mm. Der dem Objekt zugewandte Bohrungsradius beträgt 8,8 mm und der dem Objekt abgewandte Bohrungsradius 9,2 mm. In der Abb. 15 ist die asymptotische Brennweite der Linse als Funktion des Linsenstromes für verschiedene Elektronenenergien dargestellt. Die Werte wurden unter Anwendung eines von Kasper [7] angegebenen Verfahrens, bei dem der Feldberechnung für die Linse das Hyperbeltangensmodell nach Lenz zugrunde liegt, ermittelt. Lässt man als maximalen Strom durch die Linse 540 mA zu, dann betragen die minimal erreichbaren Brennweiten zwischen 9 mm bei Spannungen bis 400 kV und 30 mm bei 1,2 MV. Die Linse wird aus einem doppelt stabilisierten Hochspannungsnetzgerät HN 600-1 der Fa. Heinzinger, Rosenheim, versorgt. Die Restwelligkeit des Linsenstromes kann unter Verwendung zusätzlicher, externer Glättungskapazitäten auf $1 \cdot 10^{-5}$ begrenzt werden.

Unterhalb der Linse ist die Objekthalterung angeordnet (r in Abb. 13, Abb. 16). Sie wurde von der Fa. Polymer-Physik GmbH&Co. KG, Tübingen, hergestellt und mußte von den Institutswerkstätten für die hier gegebene Anwendung in ein neues Gehäuse eingebaut werden, das der oben beschriebenen Norm entspricht. Es ist möglich, das Objekt in Richtung des einfallenden Elektronenstrahles (Z-Richtung) und in der dazu senkrechten Ebene (X- und Y- Richtung) zu verschieben. Außerdem kann es goniometrisch um zwei zueinander senkrechte Achsen gekippt werden (siehe Abb. 16). Bis zu gewissen Grenzen ist also jede beliebige Orientierung eines zu untersuchenden Kristalles zum einfallenden Elektronenstrahl einstellbar. Sämtliche Funktionen der Objekthalterung werden über Motoren betätigt.

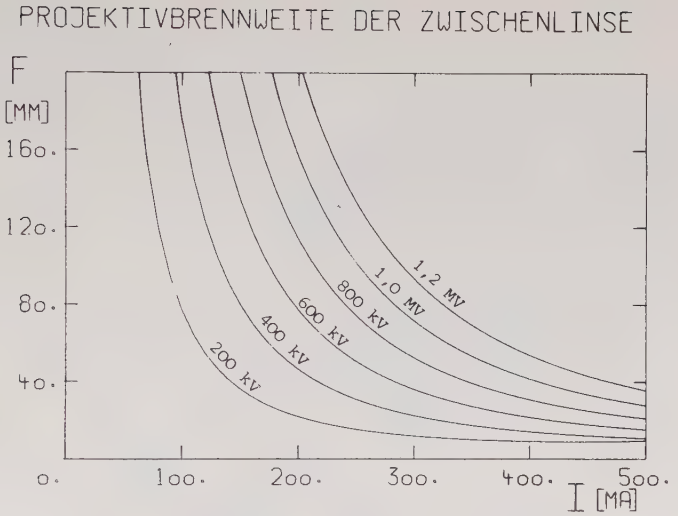


Abb. 15: Asymptotische Brennweite der ELMISKOP 101 - Zwischenlinse im Bereich von 200 kV bis 1,2 MV. Auf die Darstellung des Einflusses der verschiedenen Polschuh-Bohrungsradien kann hier verzichtet werden.

In die neu entwickelte Steuereinheit für diese Motoren ist ein elektrisch arbeitendes Lage-Rückmeldesystem integriert, mit dessen Hilfe die genaue Position des Objektes abgelesen werden kann. Der Abstand der Objektebene zur Linsenhauptebene kann durch die Z- Verschiebung der Objekthalterung zwischen 67 mm und 33 mm variiert werden. Die Genauigkeit der Positionsanzeige beträgt dabei ± 0,3 mm. Zwischen dem Objekt und der Beobachtungs- oder Registrierebene befinden sich keine abbildenden Linsen mehr. Bei Aufzeichnung auf Photoplatten beträgt die Beugungslänge je nach Stellung der Objekthalterung zwischen 2039 mm und 2073 mm. Sie wurde bestimmt auf ± 0,8 mm.

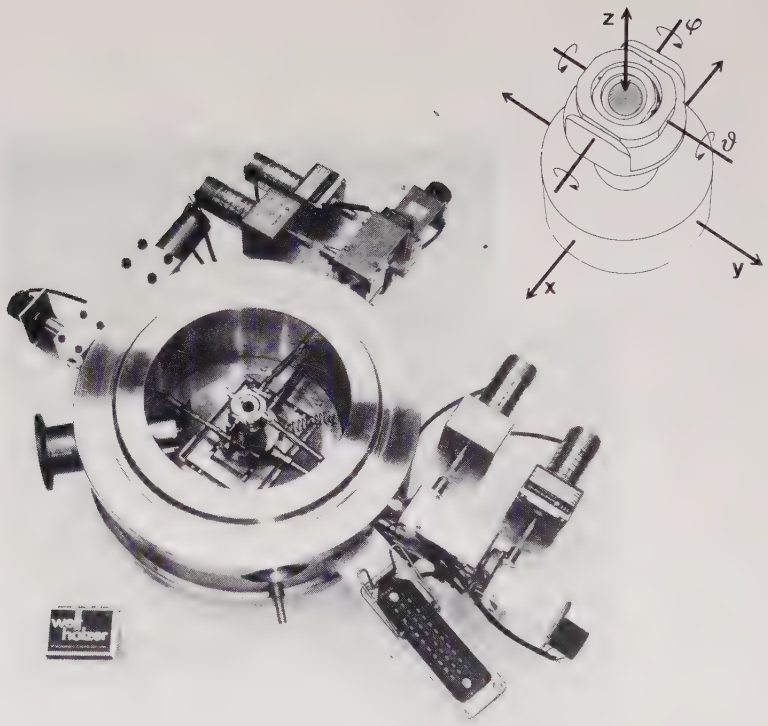


Abb. 16: Die motorgesteuerte Objekthalterung erlaubt eine Verschiebung in X-, Y- und Z - Richtung und eine euzentrische Kippung um zwei Achsen φ und ϑ.

37 mm oberhalb der Spaltmitte der magnetischen Linse ist die Blende angeordnet, durch die der Öffnungswinkel des konvergenten Bündels beschränkt wird. Sie ist untergebracht am unteren Ende eines in die Linse hinein hängenden Rüssels, der seinerseits an einem motorbetätigten X-, Y- Verschiebetisch befestigt ist (siehe p in Abb. 13). Der Rüssel kann gleichzeitig fünf Blenden verschiedener Größe aufnehmen. Die Steuerung für die Motoren der Blendenverschiebung ist integriert in diejenige der Objekthalterung. Jede der fünf Blenden läßt sich mit Hilfe der elektrischen Positionsanzeige auf die optische Achse justieren.

II.4.d Weitere Bauelemente

Das magnetische Doppelablenksystem, durch das der aus dem Beschleuniger kommende Elektronenstrahl auf die optische Achse justiert wird, ist in zwei 50 cm auseinander liegende Einzelablenkeinheiten aufgeteilt (siehe j in Abb. 5). Wegen der dadurch nur erforderlichen geringen Ablenkwinkel ist die Dimensionierung der verwendeten Standardbauteile auch für die höchsten Elektronenenergien ausreichend. Unmittelbar am Ende des Beschleunigungsrohres ist ein motorisch in den Strahl schwenkbarer Kontroll-Leuchtschirm angebracht (siehe i in Abb. 5). Außerdem befindet sich oberhalb der Blendenhalterung ein weiterer Zwischenleuchtschirm als Justierhilfe (o in Abb. 13).

Bei der Abbremsung von Elektronen mit Energien im 1 MeV-Bereich tritt harte Röntgenstrahlung auf. Aus diesem Grund ist die gesamte Beobachtungs- und Registriereinheit in einem 250 kg schweren Stahl-Abschirmgehäuse untergebracht (siehe x in Abb. 13). Sie besteht aus einem ELMISKOP 101 Endbildtubus mit Beobachtungsleuchtschirm und einer Spezial-Aufnahmekammer für Photoplatten, wie sie in Kombination mit Siemens - Bildverstärkeranlagen am ELMISKOP 101 und 102 verwendet wird. Der Leuchtschirm kann mit einer 9-fach vergrößernden Binokularlupe durch ein 60 mm dickes Bleiglasfenster beobachtet werden. Die Aufnahmekamera ist von außerhalb des Abschirmgehäuses vollkommen elektrisch steuerbar. Für sie wurde eine Relais-Steuerung entwickelt, die in Verbindung mit dem elektromagnetisch betätigten Verschluß (siehe n in Abb. 13) eine automatische Numerierung, Belichtung und einen automatischen Transport der Photoplatten ermöglicht.

Während des Betriebes der 1,2 MV Beugungsanlage wird in der Umgebung der Aufnahmekamera permanent die auftretende Röntgenstrahl-Ortsdosisleistung mit Hilfe eines Pegelwächters FHT 155 A der Fa. Frieseke&Hoepfner GmbH, Erlangen, gemessen. Beim Überschreiten eines Schwellenwertes vom 1 mR/h ertönt ein lautes akustisches Warnsignal. Außerdem erfolgt für das Bedienungspersonal die obligatorische Strahlenschutzüberwachung durch Stabdosimeter und Röntgenschutzplaketten.

II.5 Die Vakuumanlage

Der Beschleuniger wird durch einen im Dauerbetrieb arbeitenden Turbomolekularpumpstand TSU 200 (siehe h in Abb. 5) der Fa. Balzers AG, Lichtenstein, evakuiert. Der Enddruck liegt bei $1 \cdot 10^{-6}$ Torr am Strahlkopf und $5 \cdot 10^{-7}$ Torr am unteren Ende des Beschleunigungsrohres. Wie der Diplomarbeit des Verfassers [4] zu entnehmen ist, gibt die zur Herstellung des Beschleunigungsrohres verwendete, heißhärtende Epoxydharzgießmasse keine Kohlenwasserstoffe in das Vakuum ab. Wegen der hohen Wasseraufnahmekapazität von Kunststoffen ist es aber empfehlenswert, den Beschleuniger nur mit getrockneten Stickstoff zu fluten, um lange Anpumpzeiten zu vermeiden.

Die Beugungssäule wird durch einen Turbomolekularpumpstand TSU 500 (siehe h in Abb. 13) ebenfalls der Fa. Balzers AG evakuiert. Hier liegt der erreichbare Enddruck bei $2 \cdot 10^{-7}$ Torr. Beide Pumpstände sind vollautomatisch gesteuert und mit Pendelschieberventilen ausgestattet. Bei auftretenden Störungen werden diese sofort geschlossen und die Pumpen geflutet. Beschleuniger und Beugungssäule sind durch ein weiteres elektro-pneumatisches Pendelschieberventil voneinander getrennt.

Bei höchstempfindlichen Experimenten, wie zum Beispiel bei der im Kapitel III beschriebenen Messung der Hochspannungsstabilität, macht sich der geringe Störeinfluß der Turbomolekularpumpen doch so stark bemerkbar, daß diese ausgeschaltet werden müßen. Für diese Fälle stehen sowohl im Beschleuniger als auch in der Beugungssäule Titan-Sublimationspumpen zur Verfügung, die in Verbindung mit Flüssig-Stickstoff gekühlten Pumpkörpern das Vakuum aufrechterhalten (siehe l in den Abb. 5 und 13).

II.6 Die Verbindung Hochspannungsgenerator - Beschleuniger

Bei der Inbetriebnahme der 1,2 MV Beugungsanlage war der Van de Graaff - Generator direkt neben dem Beschleuniger aufgebaut, so daß die beiden Hochspannungselektroden einen Abstand von nur wenigen Zentimetern hatten. Im Laufe der Erprobung der Anlage zeigte sich jedoch, daß magnetische Wechselfelder, die vom Antriebsmotor des Van de Graaff - Generators und von einem sich in dessen Hochspannungselektrode befindlichen Hilfsgenerator erzeugt werden, im Beschleunigungsrohr noch so groß waren, daß die Elektronenbahnen merklich beeinflußt wurden. Es äußerte sich dieses in einer geringfügigen, richtungsorientierten Unschärfe von Debye-Scherrer-Eichaufnahmen. Außerdem wurde in dem Potentialteilerwiderstand des Beschleunigungsrohres, der auch als Meßwiderstand für die Hochspannungsstabilisierung dient (siehe Kapitel III), durch den Ladungstransport auf dem Band des Van de Graaff - Generators ein Wechselstrom induziert, der die Wirksamkeit der Stabilisierungseinrichtung erheblich einschränkte. Aus den genannten Gründen wurde der Van de Graaff - Generator auf einen innerhalb des Hochspannungslaboratoriums möglichst großen Abstand vom Beschleuniger versetzt. Der Abstand zwischen den beiden Säulen beträgt etwa 6 m (siehe Abb. 1 und 2). Zusätzlich wurde der 11 kW Antriebsmotor des Van de Graaff - Generators mit einer einfachen und der kleine 220 V - Hilfsgenerator mit einer fünffachen magnetischen Abschirmung versehen. Die Störeinflüsse konnten durch diese Maßnahmen unter die Nachweisgrenze reduziert werden.

Die Verbindung zwischen den beiden Hochspannungselektroden wird durch ein auf zwei isolierenden Stützen liegendes Kunststoffrohr mit 400 mm Durchmesser und durch einen in diesem axial laufenden, dünnen Metalldraht hergestellt. Wie die durchgeführten Experimente gezeigt haben, ist ein Metallisierung der Oberfläche des Verbindungsrohres nicht erforderlich.

III.

ERZEUGUNG, STABILISIERUNG UND MESSUNG DER HOCHSPANNUNG

III.1 Abschätzung der erreichbaren Elektronenenergien

Die Anlage wurde ursprünglich für eine maximale Elektronenenergie von 1 MeV projektiert. Um diesen Wert zu erreichen, ist es notwendig, daß sowohl der Beschleuniger als auch der Van de Graaff - Generator ausreichend hochspannungsfest sind. Außerdem muß der Generator den für die Erzeugung einer Spannung von 1 MV erforderlichen Strom bei noch stabiler Arbeitsweise liefern können.

Für den im Rahmen der vorliegenden Arbeit aufgebauten Beschleuniger läßt sich aus den im Abschnitt II.3.c angegebenen Feldstärken und aus der Druchbruchfeldstärke der Luftatmosphäre eine oberste Grenzspannung abschätzen. Das Hochspannungslaboratorium wird durch eine Klimaanlage mit getrockneter Zuluft versorgt, deren relative Feuchtigkeit 50 Prozent nicht überschreitet. Bei guter Sauberkeit im Labor kann man dann eine Durchbruchfeldstärke von etwa 30 kV/cm erwarten. Die höchste Feldstärke tritt für den Beschleuniger an der Krümmung der Hochspannungselektrode auf. Sie beträgt bei 1 MV 24,3 kV/cm. Daraus ergibt sich eine zu erwartende Grenzspannung zwischen 1,2 MV und 1,3 MV. Die im Innern des Beschleunigungsrohres auftretenden Feldstärken wurden im Rahmen der Berechnung von Elektronenbahnen ermittelt (siehe Abb. 17). Sie liegen bei der verwendeten Elektrodenform und bei einer Beschleunigungsspannung von 1,2 MV mit 52 kV/cm unterhalb des Isolationsvermögens des Hochvakuums.

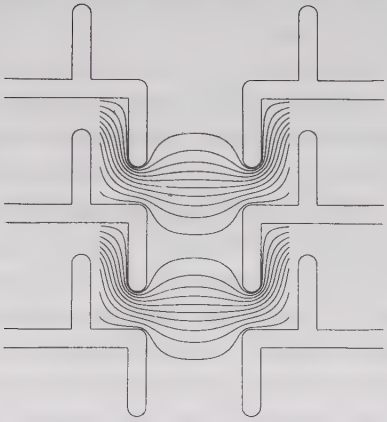


Abb. 17: Berechnete Potentialverteilung im Innern des Beschleunigungsrohres. Es sind Äquipotentiallinien für Spannungswerte dargestellt, die sich jeweils um 1/10 der Potentialdifferenz pro Beschleunigungsstufe unterscheiden. Die Randbedingungen für das Liebmannsche Maschenverfahren ergeben sich aus der periodischen Wiederholung des elektrischen Feldes. Am Anfang und am Ende des Beschleunigungsrohres muß der Übergang in den feldfreien Raum gesondert berechnet werden.

Für den Van de Graaff - Generator wurden von Hiller [3] keine Berechnungen elektrischer Felder angegeben. Er gibt jedoch einen experimentellen Grenzwert für die Spannung von 1,06 MV an. Über die Stabilität der erzeugten Hochspannung macht er mangels geeigneter Meßeinrichtung keine Angaben, sondern gibt lediglich bei Verwendung einer Stabilisierungseinrichtung für den Beladestrom eine Stabilität des vom Generator gelieferten Kurzschlußstromes von $2 \cdot 10^{-3}$ bei 250 µA Gesamtstrom an.

III.2 Steigerung der Betriebsspannung des Van de Graaff - Generators

Das Ladungstransportsystem in einem Van de Graaff - Generator stellt in sehr guter Näherung eine ideale Stromquelle dar. Der gelieferte Strom ist nahezu unabhängig von dem als Belastung wirkenden Potentialteilerwiderstand, erzeugt jedoch an diesem als Spannungsabfall die Hochspannung. Für einen stabilen Betrieb ist es günstig, mit einem hohen Strom und einem dementsprechend geringen Widerstand zu arbeiten. Der Letztere beträgt für alle 42 Stufen zusammen 4,1 GΩ. Damit ist zur Erzeugung von einem Mega-Volt im Van de Graaff - Generator ein Strom von 243 µA erforderlich. Durch den Anschluß des Beschleunigers mit seinem Potentialteilerwiderstand von 21 GΩ werden weitere 48 µA benötigt. Der Elektronen-Strahlstrom liegt bei Beugungsexperimenten normalerweise unterhalb von 1 µA und ist vernachlässigbar. Für eine Steigerung der Betriebsspannung auf 1,2 MV erhöht sich der zu erzeugende Strom auf 349 µA. Eine obere Grenze für den Strom ergibt sich aber aus der maximal möglichen Flächenladungsdichte auf dem Fadenband des Generators und aus dem Oberflächenwiderstand des für den Ladungstransport verwendeten Materiales. Wird eine gute Stabilität auch bei höchsten Spannungen gefordert, dann ergibt sich eine weitere Einschränkung für den erreichbaren Strom aus dem Beladevorgang des Generatorbandes (siehe Abschnitt III.3). Obwohl der Generator mit der sich aus mechanischen Gründen ergebenden höchstmöglichen Bandgeschwindigkeit von 50 m/sec betrieben wurde, zeigte sich schon in den ersten Untersuchungen, daß man mit 290 µA nahe an der Grenze der erreichbaren Stromstärke war.

Im Laufe der hier beschriebenen Arbeiten ist es aber gelungen, die Beschleunigungsspannungen auf Werte zwischen 1250 kV und 1300 kV zu steigern. In Verbindung mit der neu entwickelten Spannungs-Stabilisierungseinrichtung wurde es dadurch möglich, die im Kapitel VI beschriebenen Messungen zum Critical - Voltage Effekt am 333 Reflex von Silizium durchzuführen.

Bei Spannungen bis etwa 1 MV arbeitet die gesamte Elektronen-Beschleunigungsanlage problemlos. Es kann sofort nach dem Einschalten, also ohne jegliche Konditionierung, ein stabiler 1 MeV - Elektronenstrahl erzeugt werden. Nur gelegentlich ist es erforderlich, die Anlage zu reinigen oder nach einer Sprühstelle abzusuchen. Soll die Betriebsspannung jedoch auf über 1 MV gesteigert werden, dann nimmt der Arbeitsaufwand stark zu. Insbesondere für Experimente bei Elektronenenergien von mehr als 1,1 MeV ist in der Hochspannungshalle höchste Sauberkeit aufrechtzuerhalten. Trotzdem kann es in diesen Fällen erforderlich sein, die gesamte Anlage täglich ein- oder mehrmals sorgfältigst von Staubteilchen zu reinigen. Die Steigerung der mit dem Van de Graaff - Generator erreichbaren Spannung über den von Hiller [3] mit 1,06 MV angegebenen Wert hinaus gelang durch folgende Maßnahmen:

1) Umbau der Sollfunkenstrecke des Generators

Bei Beschleunigungsspannungen zwischen 900 kV und 1000 kV traten anfangs regelmäßig Überschläge über die ganze Sollfunkenstrecke des Generators auf. Daraufhin wurden die Elektroden der Strecke ausgebaut und so verändert, daß wesentlich höhere Schlagweiten eingestellt werden konnten.

2) Überarbeiten der Potentialteilerplatten und der Hochspannungselektrode des Generators

Sämtliche Potentialteilerelektroden wurden auf Verbiegungen und auf ungleiche Abstände zu den Nachbarelektroden hin untersucht und, falls notwendig, ausgerichtet. An den äußeren Krümmungen und an der kugelförmigen Hochspannungselektrode vorhandene Unebenheiten wurden abgeschliffen und poliert.

3) Nachbehandlung der Endlosverklebung des für den Ladungstransport verwendeten Polyamiddrahtes

Bei dem von Hiller [3] entwickelten Verfahren zur Endlosverklebung des Polyamiddrahtes, der beim Betrieb des Generators hohen mechanischen Belastungen ausgesetzt ist, werden die zwei Enden über eine Länge von etwa 35 mm keil-

förmig angeschliffen und mit Ameisensäure verklebt. Neue Messungen haben gezeigt, daß an dieser Klebestelle eine merkliche Leitfähigkeit des Polyamid-Materiales auftritt. Diese führt bei einem Betrieb des Generators mit hohen Flächenladungsdichten zu einer durch ein bläuliches Leuchten sichtbaren, lawinenartigen Entladung des Bandes entlang des die Klebestelle umgebenden Bereiches. Der Effekt kann durch eine ausgiebige Wärmebehandlung der Nahtstelle ausreichend gut reduziert aber nicht völlig ausgeschaltet werden. Im Gegensatz zu der Klebung machen sich Verschmutzungen des Fadenbandes durch aus den Kugellagern austretendes Öl nicht bemerkbar.

4) Einblasen von Schwefelhexafluorid in den Generator

Ab etwa 1150 kV beginnt das Fadenband sich in der Potentialteilersäule merklich zu entladen, da die Transportfeldstärke die Durchbruchfeldstärke der Luftatmosphäre erreicht. Spuren des elektronegativen Gases SF_6, die oberhalb der Beladevorrichtung in den vom Fadenband mitgerissenen Luftstrom eingeblasen werden, stabilisieren den Ladungstransport so stark, daß Beschleunigungsspannungen über 1250 kV erreicht werden konnten.

Der Beschleuniger, mit dem aus Epoxydharz gegossenen Beschleunigungsrohr, arbeitete während der ganzen bisherigen Messungen auch bis zu den höchsten Beschleunigungsspannungen vollkommen wartungs- und störungsfrei.

III.3 Messung und Stabilisierung der Hochspannung

Das Prinzip der Meß- und Stabilisierungsmethode der Hochspannung ist in der Abb. 18 dargestellt. Die rein ohmschen Potentialteilerwiderstände betragen pro Stufe im Beschleuniger 500 MΩ und im Van de Graaff - Generator 99 MΩ . Bei diesen hohen Werten können die zwischen den einzelnen Potentialteilerelektroden auftretenden Kapazitäten nicht mehr vernachlässigt werden. Sie sind deswegen ebenfalls eingezeichnet. Eine weitere wichtige Ersatzkapazität besteht zwischen den verbundenen Hochspannungselektroden und den geerdeten Hallenwänden. Die Hochspannung wird über den durch den Potentialteilerwiderstand des Beschleunigers abfließenden Strom gemessen. Um das erhaltene Signal auch für die Stabilisierung der Spannung verwenden zu können, mußte ein kompensierter, das heißt frequenzunabhängiger Spannungsteiler aufgebaut werden. Dies gelang dadurch, daß zu den beiden Meßwiderständen mit 240 kΩ und 20 kΩ zwei, auf die zwischen den Potentialteilerelektroden bestehende Kapazität von 72 pF abgestimmte Kondensatoren parallel gelegt wurden.

Am Punkt P2 der Stabilisierungseinrichtung (siehe Abb. 18), an dem ein Teilerverhältnis von $1{,}05 \cdot 10^6$: 1 gegeben ist, wird mit einem 4 1/2 - stelligen Digitalvoltmeter AN 2574 der Fa. Analogic, das eine Eingangsimpedanz von 1 GΩ hat, die Hochspannung gemessen. Die Anzeige löst 100 Volt auf. Diese Messung wurde von Zeit zu Zeit mittels Debye - Scherrer - Elektronenbeugungsaufnahmen an polykristallinen Substanzen mit genau bekannten Gitterkonstanten, wie zum Beispiel Thalliumchlorid, geeicht (siehe Abb. 19). Wegen geringer Restmagnetfelder sind die dabei erhaltenen Intensitätsringe in den Beugungsdiagrammen nicht vollkommen rotationssymmetrisch. Oberhalb von 500 kV lassen sich die Beschleunigungsspannungen mit einem relativen Fehler von $\pm\ 4 \cdot 10^{-3}$ angeben.

Das Eingangssignal für die Stabilisierung der Hochspannung wird am Punkt P1 (siehe Abb. 18) des frequenzunabhängigen Spannungsteilers abgegriffen. Bei 1 MV liegen in P1 mit einem Teilerverhältnis von 80770 : 1 etwa 12 Volt an. Die entwickelte Stabilisierungseinrichtung arbeitet zweistufig (grob und fein) und kann bis zu einer Frequenz von 0,01 Hz herunter auftretende Spannungsschwankungen kompensieren.

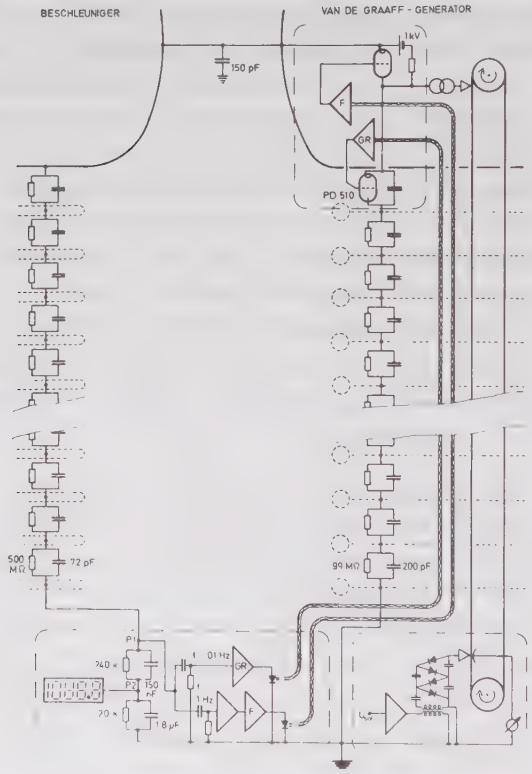


Abb. 18: Prinzip der Hochspannungsmessung und der Wirkungsweise der neu entwickelten Einrichtung zur Stabilisierung der Hochspannung.
≈≈≈: Lichtleiter

Das Prinzip der Grobstabilisierung geht davon aus, daß das Ladungstransportsystem im Van de Graaff - Generator eine ideale Stromquelle darstellt, und daß der Gesamtlastwiderstand deswegen bei auftretenden Stromschwankungen so verändert werden muß, daß sich ein konstanter Spannungsabfall ergibt. Der Gesamtwiderstand wird variierbar, wenn einer der Potentialteilerwiderstände des Generators durch eine Elektronenröhre PD 510 ersetzt wird, die zum Beispiel in Farbfernsehgeräten als Ballasttriode zur Verwendung kommt. Durch Steuerung der Gitterspannung kann ihr Widerstand so verändert werden, daß an ihr ein Spannungsabfall zwischen 0 Volt und einem höchstzulässigen Wert von 27,5 kV auftritt. Da der Teilerwiderstand des Generators von 4,1 GΩ zusammen mit der Kapazität der Hochspannungselektroden gegen Erdpotential von 150 pF einen extremen Tiefpass darstellt, kann die Elektronenröhre nur anstelle des obersten Teilerwiderstandes eingesetzt werden. Sie ist in der Hochspannungselektrode des

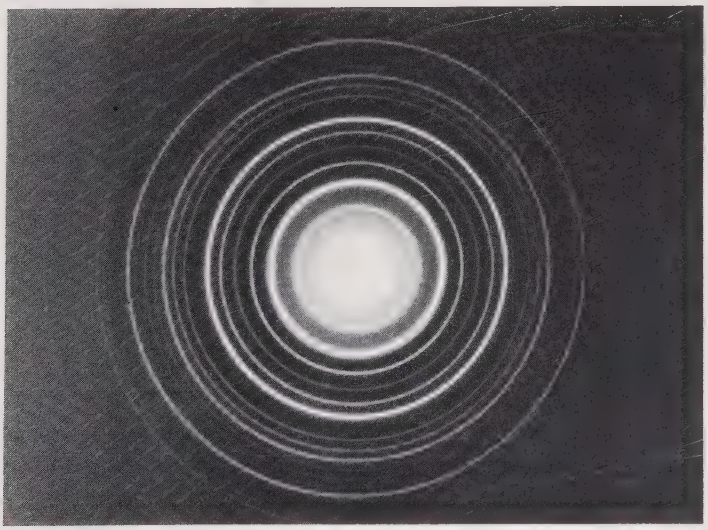


Abb. 19: Debye - Scherrer - Elektronenbeugungsdiagramm zur Eichung der Hochspannung: Thalliumchlorid, 800 kV

Generators untergebracht. Das Eingangssignal für den das Gitter der Röhre ansteuernden Verstärker wird mit Hilfe eines Lichtleiters von Erdpotential auf die Hochspannung übertragen. Die am Punkt P1 auftretenden Schwankungen der Spannung werden von einem empfindlichen Feldeffekt-Operationsverstärker mit einer Eingangsimpedanz von 20 MΩ detektiert, verstärkt und über eine Leuchtemitterdiode auf den Lichtleiter gegeben. Es ist wichtig, das Steuersignal dabei in analoger Form zu übertragen. Wie Versuche gezeigt haben, treten bei einer Spannungs/Frequenz- und anschließenden Frequenz/Spannungs-Wandlung so große Phasenverschiebungen auf, daß die Wirkungsweise der Stabilisierungseinrichtung außer Kraft gesetzt wird. Da der Strom durch die Röhre PD 510 sehr gering ist - er beträgt bei 1 MV nur 291 μA - und zu ihr eine Kapazität von 200 pF parallel liegt, liefert das beschriebene Verfahren nur eine Grobstabilisierung, deren Wirksamkeit bei höheren Frequenzen abnimmt.

Zusätzlich wurde eine ergänzende Feinstabilisierung entwikkelt, die zu der vom Van de Graaff - Generator erzeugten, grob stabilisierten Hochspannung eine schnell regelbare Zusatzspannung zwischen 200 und 800 Volt addiert. Dazu ist es erforderlich, in der Hochspannungselektrode des Generators eine 1 kV - Spannungsquelle, die einen kleinen dynamischen Innenwiderstand hat, zu betreiben. Das Steuersignal wird von einem zweiten Feldeffekt-Operationsverstärker detektiert und, wesentlich höher als bei der Grobstabilisierung verstärkt, über einen zweiten Lichtleiter übertragen. Die Feinstabilisierung verarbeitet nur Frequenzen oberhalb von 1 Hz. Die Stromversorgung der auf Hochspannung liegenden Teile der Stabilisierungseinrichtung erfolgt durch einen kleinen 220 Volt - Hilfsgenerator, der über die obere Rolle des Ladungstransportbandes angetrieben wird.

Die Hochspannung kann durch die beschriebene Stabilisierungseinrichtung nur dann konstant gehalten werden, wenn der Strom im Generator um nicht mehr als ± 2 μA schwankt. Für eine Beschleunigungsspannung von 1 MV wird ein Gesamtstrom von 291 μA benötigt. Die geforderte Stromstabilität beträgt dann $\Delta I/I = 1{,}3 \cdot 10^{-2}$. Sie wird dadurch erreicht, daß man das Fadenband des Van de Graaff - Generators mit einer stromstabilisierten Hochspannungskaskade belädt. Zusätzlich muß die Beladeeinrichtung,

die aus dem Beladekamm und einer sich hinter dem Band befindlichen, geerdeten Gegenelektrode besteht, so justiert werden, daß der über diese Gegenelektrode abfließende Strom möglichst gering bleibt. Schwankungen dieses Stroms führen zu den Instabilitäten des vom Generators gelieferten Stroms. Beim Übergang zu Spannungen oberhalb von 1 MV wird es, wegen der hohen Flächenladungsdichten auf dem Fadenband, sehr schwierig die Beladeeinrichtung so einzustellen, daß der über die Gegenelektrode abfließende Strom 2 µA nicht überschreitet. Die erreichbaren Stabilitäten hängen empfindlich von der Anordnung der Beladeeinrichtung ab. Die Beladespannungen liegen zwischen 15 und 25 kV und werden mittels einer stromstabilisierten Kaskade vom Typ HNC 30000-1 neg der Fa. Heinzinger, Rosenheim, erzeugt. Die Gesamthochspannung wird über den an dieser Kaskade mit einer Genauigkeit von 0,5 Prozent einstellbaren Beladestrom eingestellt. Um die im Abschnitt III.4 genannten Hochspannungsstabilitäten zu erreichen, mußte von der von Hiller [3] angegebenen Anordnung der Beladeeinrichtung abgegangen werden.

III.4 Messung der Stabilität der Hochspannung

Die Hochspannung wird stabilisiert, um einen monochromatischen Elektronenstrahl erzeugen zu können. Obwohl das an dem frequenzunabhängigen Spannungsteiler abgreifbare Signal zur Verfügung steht, läßt sich eine zuverläßige Aussage über die Stabilität der Hochspannung nur durch eine Energieanalyse der beschleunigten Elektronen gewinnen. Wie im folgenden dargestellt, wurden beide Meßverfahren angewendet und die erhaltenen Ergebnisse verglichen.

Eine einfache Energieanalyse der Elektronen ergibt sich aus der Aufnahme von Debye - Scherrer - Beugungsdiagrammen an polykristallinen Eichpräparaten (siehe Abb. 19). Bei bekannter Beugungslänge L und bekannten Netzebenenabständen d_{hkl} läßt sich aus den Ringradien R anhand der Gleichungen

$$\lambda \cdot L = R \cdot d_{hkl}$$

und

$$\lambda = h \cdot \left\{ 2m_o e \cdot E_o \cdot [1+(e/2m_o c^2) \cdot E_o] \right\}^{-1/2}$$

die Wellenlänge λ der Elektronen und damit auch E_o bestimmen. Bei schwankender Beschleunigungsspannung werden die Beugungsringe unscharf. Aus dieser Unschärfe $\Delta R/R$ kann eine Aussage über die während des Belichtungszeitraumes aufgetretenen Schwankungen der Hochspannung $\Delta E_o/E_o$ abgeleitet werden:

$$\left| \frac{\Delta E_o}{E_o} \right| \leq c(E_o) \cdot \left| \frac{\Delta R}{R} \right|$$

mit

$$c(E_o) = (2m_o c^2 + e \cdot E_o)/(m_o c^2 + e \cdot E_o)$$

Es ist $c(300\ kV) = 1{,}63$ und $c(1\ MV) = 1{,}34$. Unter Anwendung des Lebedeffschen Strahlenganges aufgezeichnete Debye-Scherrer-Beugungsdiagramme an Thalliumchlorid (siehe Abb. 19) zeigten oberhalb von 400 kV bei nicht stabilisierter Hochspannung eine

Ringunschärfe von $\Delta R/R = 2 \cdot 10^{-3}$. Diese lag noch deutlich oberhalb der Auflösungsgrenze der Photoplatten und veränderte sich aber weder beim Einschalten der Stabilisierungseinrichtung noch beim Verwenden einer feineren Elektronenquelle und kleinerer Blenden im Strahlengang. Daß eine Ringschärfe, wie sie nach der kinematischen Theorie für die gegebene Kristallitgröße zu erwarten wäre, nicht auftritt, ist durch die Aufspaltung der Beugungsreflexe beim Durchstrahlen keilförmiger Bereiche der wahllos orientierten Kristalle zu erklären. Diese wurde von Moliere und Niehrs [9] oder auch von Lehmpfuhl und Moliere [10] beobachtet und anhand der dynamischen Theorie erklärt. Mit Hilfe der Debye - Scherrer - Diagramme gelingt es also nicht, die Funktionsweise der Stabilisierungseinrichtung zu überprüfen. Es kann lediglich ausgesagt werden, daß die Spannungsschwankungen $\Delta E_o/E_o$ an dem nicht stabilisierten Van de Graaff - Generator bei Verwendung der oben angegebenen Bandbeladeeinrichtung kleiner als $3 \cdot 10^{-3}$ sind.

Eine ausreichend genaue Messung der Hochspannungsstabilität wurde, auf Vorschlag von Speidel [11], mit einem auf der Ausnutzung der chromatischen Bildfehler einer magnetischen Elektronenlinse beruhenden Strahlengang durchgeführt . Eine systematische Übersicht der Farbfehler von Elektronenlinsen gibt Kasper [12]. Im Vergleich zu den üblicherweise berücksichtigten geometrischen Bildfehlern sind nur die Farbfehler erster Ordnung bedeutsam. Zu ihrer Beschreibung führt man in der abzubildenden Objektebene eine komplexe Koordinate u_o ein. Mit einer komplexen Vergrößerung $M = V \cdot \exp(i \cdot \theta)$ bezieht man üblicherweise auch die Koordinate in der Bildebene u_b auf die Objektebene durch: $u_b = M \cdot u_o$. V stellt dabei die reellwertige Vergrößerung und θ den Bilddrehwinkel dar. Bei einer reinen Magnetlinse beschreiben die chromatischen Fehler nicht nur den Einfluß von Schwankungen der Elektronenenergie, die man mit der relativistisch korrigierten Beschleunigungsspannung durch $\Delta E_o^*/E_o^*$ angibt, sondern auch den Einfluß von Schwankungen des Linsenstromes $\Delta I/I$ auf die Abbildung. Für die objektbezogene Lateralaberation Δu_o ergibt sich nach Kasper [12]:

$$\Delta u_o = \left(\frac{2\Delta I}{I} - \frac{\Delta E_o^*}{E_o^*}\right) \cdot \left[C_F \cdot u_o' + (C_V + i \cdot C_\theta) \cdot u_o\right]$$

Die Koeffizienten C_F, C_V und C_θ beschreiben in der angegebenen Reihenfolge den axialen Farbfehler, den Farbfehler der (reellen) Vergrößerung und den Farbfehler der Bilddrehung.
u_o' ist die komplexe Bahnneigung im Objektpunkt.

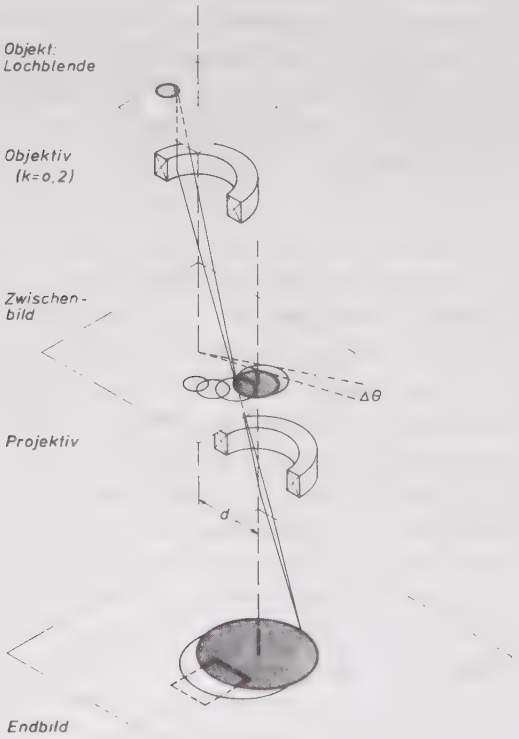


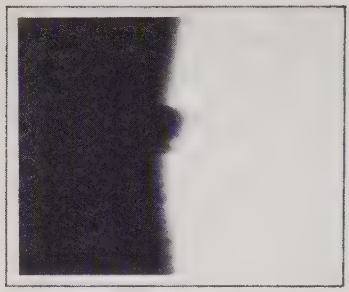
Abb. 20: Strahlengang zur Bestimmung der Stabilität der Hochspannung mittels der Farbfehler der Vergrößerung und der Bilddrehung einer magnetischen Elektronenlinse.

Lenz [13,14] berichtete schon im Jahr 1951 über eine Geschwindigkeitsanalyse von Elektronen mittels des Farbfehlers von Magnetlinsen. Er berichtete, daß es dazu günstig ist, die durch den Öffnungsfehler entworfene Kaustikfläche zu beobachten. Liu [15] erreichte mit sehr großen Neigungswinkeln der Elektronenbahnen gegen die optische Achse, ebenfalls unter Ausnutzung des axialen Farbfehlers, eine Energieauflösung von 3 eV bei einer Strahlspannung von 100 kV.

Bei dem hier verwendeten Strahlengang, der in der Abb. 20 schematisch dargestellt ist, wird im Gegensatz zu den genannten Arbeiten nicht der axiale Farbfehler, sondern der Farbfehler der Vergrößerung und der Bilddrehung für die Messung der Schwankungen der Beschleunigungsspannung verwendet. Dazu bildet man die Kante einer weit außeraxial angeordneten Blende in eine Zwischenbildebene ab und beobachtet das Bild der Kante mit Hilfe eines um 40 mm achsenverschobenen Projektives. Die Blende wird achsenparallel beleuchtet. Die Dispersion der Anordnung wird durch die Verschiebung des Bildes auf der Photoplatte bei einer kleinen Änderung der Beschleunigungsspannung bestimmt. Die Vergrößerung der in der Abb. 20 als Objektiv bezeichneten Linse beträgt 30, die des Projektives 93. Das Objektiv wird mit einer Linsenstärke (nach Lenz) k = 0,24 betrieben.Für diese Anordnung wurden die Farbfehlerkoeffizienten der Magnetlinse freundlicherweise von Herrn Ströer vom Lehrstuhl für Theoretische Elektronenoptik berechnet. Es ist C_F = 46 mm und C_V =0,97 . Für C_θ gilt unabhängig von der Vergrößerung $C_\theta = \frac{\pi}{2} \cdot k$ und damit C_θ = 0,38 . Mit Neigungswinkeln der von der abzubildenden Kante ausgehenden Elektronenstrahlen die kleiner als $1 \cdot 10^{-3}$ sind, und bei dem gegebenen Achsenabstand kann der Einfluß des axialen Farbfehlers vernachlässigt werden. Dann ergibt sich für den hier nur interessierenden Betrag $|\Delta u_o| = \sqrt{u_o \cdot u_o^*}$ der Lateralaberation in der Objektebene:

$$|\Delta u_o| \leq \left(\frac{|2\Delta I|}{I} + \frac{|\Delta E_o^*|}{E_o^*} \right) \cdot \sqrt{(C_V^2 + C_\theta^2)} \cdot |u_o|$$

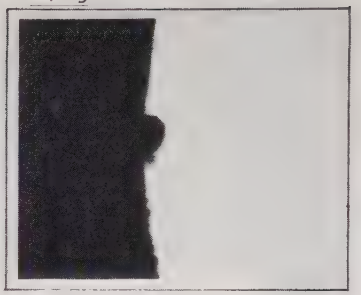
a) nicht stabilisiert



750 kV

$\Delta E_o/E_o = 2 \cdot 10^{-3}$

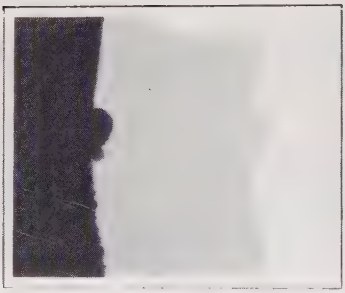
b) grob stabilisiert



748,9 kV

$\Delta E_o/E_o = 1 \cdot 10^{-4}$

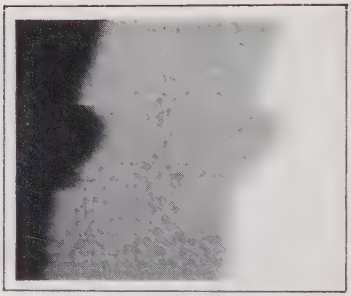
c) fein stabilisiert



750,9 kV 748,8 kV

$\Delta E_o/E_o = 5 \cdot 10^{-5}$

d) fein stabilisiert



1010,7 kV 1008,2 kV

$\Delta E_o/E_o = 3 \cdot 10^{-4}$

Abb. 21: Hochspannungsstabilität der Beugungsanlage; gemessen über die chromatischen Bildfehler einer magnetischen Elektronenlinse. Belichtungszeit jeweils 10 sec. Der Bildausschnitt entspricht dem in der Abb. 20 gestrichelt umrandeten Bereich in der Endbildebene

Die Lateralaberation in der Endbildebene erhält man durch Multiplikation mit der Gesamtvergrößerung. In der Abb. 21 sind die Ergebnisse der Stabilitätsmessungen dargestellt. Die Genauigkeit war grundsätzlich durch den auf $1 \cdot 10^{-5}$ stabilisierten Linsenstrom beschränkt. Die angegebenen Stabilitäten wurden durch photometrische Auswertung der Unschärfe der Abbildung der Kante ermittelt. Die Belichtungszeit der Aufnahmen betrug jeweils 10 Sekunden. Eine Auswertung der Abb. 21 c ergibt für den Farbfehlerkoeffizienten der Vergrößerung mit $C_V = 1{,}07$ eine Abweichung von 11 Prozent gegenüber dem von Ströer berechneten Wert. Diese Messungen wurden noch durchgeführt, bevor die Betriebsspannung des Van de Graaff - Generators durch die im Abschnitt III.2 beschriebenen Maßnahmen gesteigert wurde. Sie ergaben eine maximale Spannungsstabilität von $5 \cdot 10^{-5}$ im Bereich von 800 kV. Beim Übergang zu Spannungen um 1 MV verschlechterte sie sich auf $3 \cdot 10^{-4}$.

Durch einen Vergleich mit diesen Ergebnissen konnten die Messungen der Hochspannungsstabilität mittels des frequenzunabhängigen Spannungsteilers des Beschleunigers überprüft werden, die auch eine Beobachtung des zeitlichen Verlaufes der Spannungsschwankungen zulassen. In der Abb. 22 sind solche Messungen des zeitabhängigen Spannungsverlaufes dargestellt. Sie wurden im Anschluß an die Durchführung der oben genannten Maßnahmen zur Steigerung der Hochspannung aufgezeichnet und zeigen, daß die Stabilität nun auch für Beschleunigungsspannungen bis über 1 MV auf $1 \cdot 10^{-4}$ gesteigert werden konnte.

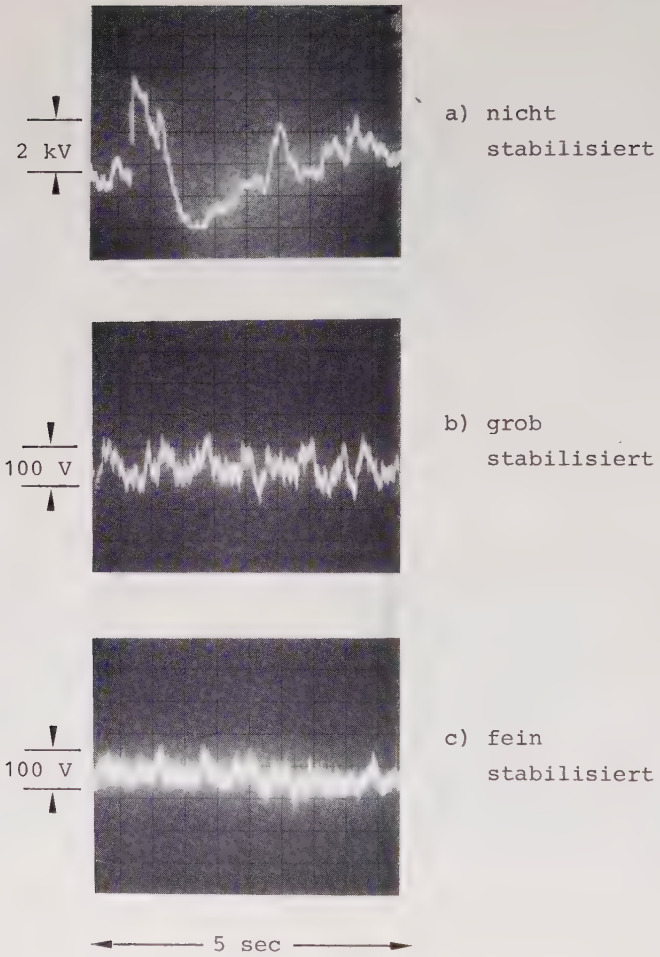


Abb. 22: Messung der Konstanz der Hochspannung bei 1 MV über den frequenzunabhängigen Potentialteiler des Beschleunigers nach Durchführung der im Abschnitt III.2 beschriebenen Maßnahmen.

IV.

THEORETISCHE GRUNDLAGEN ZUR ELEKTRONENBEUGUNG IN PERFEKTEN EINKRISTALLEN

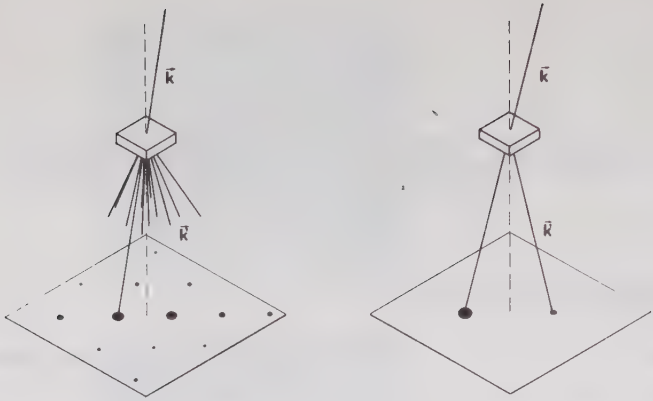
IV.1 Die geometrische und die kinematische Theorie

Durchstrahlt man mit einem parallelen und monochromatischen Elektronenstrahl einen dünnen Einkristall, dann erhält man als Beugungsbild ein Punktdiagramm, wie es zum Beispiel in der Abbildung 23 dargestellt ist. Eine Aussage sowohl über die Lage als auch die Intensität der auftretenden Beugungsreflexe liefert für den allgemeinen Fall nur die dynamische Theorie der Elektronenbeugung. Diese ist relativ kompliziert und erfordert, wenn mehr als zwei Beugungsreflexe in der Rechnung zu berücksichtigen sind, die Zuhilfenahme numerischer Datenverarbeitung. Einfach dagegen, aber auch wenig aussagekräftig, ist die geometrische Beugungstheorie. In besonderen Fällen liefert schon die kinematische Theorie eine ausreichende Näherung für die Intensitäten in Beugungsreflexen.

Die einfachste Aussage der geometrischen Theorie ist die Bragg-Gleichung. Sie gibt für die Richtungen an, unter denen Beugungsreflexe auftreten können:

$$2 \cdot d_{hkl} \cdot \sin\theta = n \cdot \lambda \qquad \text{mit } n = 0, 1, 2, \ldots \qquad (4.1)$$

d_{hkl} ist der Netzebenenabstand der durch die Millerschen Indices h, k und l charakterisierten reflektierenden Netzebenschar. θ ist der halbe Streuwinkel und wird auch als Bragg-Winkel bezeichnet. λ ist die Wellenlänge der reflektierten Elektronen. Für elastische Streuung ist eine zu der Bragg-Gleichung äquivalente Darstellung, allerdings im reziproken Raum, die vektorielle Laue-Bedingung:



a) b)

Abb. 23: Punktbeugungsdiagramm an einem dünnen Einkristall bei paralleler Einstrahlung der Elektronen.
a)Vielstrahlfall, b) Zweistrahlfall

$$\vec{k}' = \vec{k} + \vec{g} \qquad (4.2)$$

$\vec{k}$ ist der Wellenvektor der einlaufenden, $\vec{k}'$ der Wellenvektor einer auslaufenden Elektronenwelle und $\vec{g}$ ein Vektor des um den Faktor 2π gestreckten reziproken Gitters, mit :

$$|\vec{k}| = \frac{2\pi}{\lambda}, \quad |\vec{g}| = \frac{2\pi}{d_{hkl}} \qquad (4.3)$$

Eine sehr nützliche geometrische Interpretation der Laue-Bedingung stellt das Modell der Ewaldschen Ausbreitungskugel dar. So erweist es sich als günstig, für die Beschreibung von Einschußrichtungen, die von der Bragg-Bedingung abweichen, den Anregungsfehler $\vec{s}_g$ * einzuführen, als den Abstandsvektor zwischen

---

* Hier und auch weiterhin sollen die Vektoren des reziproken Gitters, wenn sie als Indices auftreten, zur Vereinfachung ohne das Pfeilsymbol geschrieben werden:

also z.B. $C^{(j)}_{g-h}$ statt $C^{(j)}_{\vec{g}-\vec{h}}$

dem zum reziproken Gittervektor $\vec{g}$ gehörenden Gitterpunkt und der Ewaldschen Ausbreitungskugel. Die vektorielle Laue-Bedingung geht dann über in:

$$\vec{k}' = \vec{k} + \vec{g} + \vec{s}_g \qquad (4.4)$$

Die zu der einwärtsgerichteten Oberflächennormalen des Kristalls parallele Komponente s_g des Anregungsfehlers $\vec{s}_g$ wird als negativ definiert, wenn der Gitterpunkt außerhalb, und als positiv definiert, wenn er innerhalb der Ewaldkugel liegt.

Die kinematische Theorie liefert über die geometrische Theorie hinaus die Intensität in den Beugungsreflexen, und zwar auch für den Fall, daß für die Einschußrichtung die Bragg-Bedingung nicht mehr erfüllt ist. Mit der Strukturamplitude für Elektronen F_g^{el} (siehe Abschnitt IV.7) definiert man eine der exakten Bragg-Orientierung zugeordnete Extinktionslänge ξ_g gemäß

$$\xi_g = \frac{|\vec{k}| \cdot V}{2 \cdot |F_g^{el}|} \qquad (4.5)$$

wobei V_{zell} das Volumen der Elementarzelle ist, und führt den Selektionsfehler W ein, mit:

$$W = (s_g / 2\pi) \cdot \xi_g \qquad (4.6)$$

Bei der Beugung an einer planparallelen Platte der Dicke D ergibt sich dann aus der kinematischen Theorie für die Intensität I_g in einem Beugungsreflex g zum Beispiel nach Kasper [16] bei geeigneten Umbenennungen und Substitutionen:

$$I_g(D) = \frac{\text{const.}}{W^2} \cdot \sin^2\left(\frac{\pi \cdot D \cdot W}{\xi_g} \right) \qquad (4.7)$$

Die Aussagen der kinematischen Theorie werden unter der Voraussetzung hergeleitet, daß die gestreuten klein gegenüber den eingestrahlten Intensitäten sind. Die Gleichung (4.7) ist deswegen nur für sehr geringe Kristalldicken oder bei großen Anregungsfehlern eine brauchbare Näherung.

IV.2 Die dynamische Theorie der Elektronenbeugung

Die im folgenden beschriebene Formulierung der dynamischen Theorie, bei der die Wellenfunktion der schnellen Elektronen innerhalb eines Kristalles durch eine Linearkombination von Blochwellen dargestellt wird, beruht auf der von Bethe [17] im Jahr 1928 vorgeschlagenen Methode. Das Blochwellenmodell erweist sich bei der Interpretation der anomalen Absorptionerscheinungen und des im Kapitel VI beschriebenen Critical-Voltage Effektes als besonders geeignet. Außer der Betheschen Theorie gibt es noch andere Zugänge zur dynamischen Theorie. Neben neueren Vorschlägen von Berry [18] und von Hurley et al. [19] sind dies vor allem eine auf Darwin [20] zurückgehende, von Howie und Whelan [21] weiterentwickelte, wellenoptische Methode und die Multi-Slice-Theorie von Cowley und Moodie [22].

Die Wechselwirkungen schneller Elektronen mit einem Kristall unterteilt man in elastische und inelastische Sreuung. Auf eine Berücksichtigung der auf die inelastischen Streuprozesse zurückzuführenden Absorptionserscheinungen im Rahmen der dynamischen Theorie wird im Abschnitt IV.3 eingegangen.

Die elastischen Wechselwirkungen finden zwischen den einfallenden Elektronen und dem Kristallpotential $V(\vec{r})$ statt. Dieses wird gegeben durch die Anordnung der Atomkerne und durch die Ladungsdichte $\rho_-(\vec{r})$ der Elektronen und ist in einem idealen Kristall dreifach periodisch. Nach Bethe [17] kann es in eine dreifache Fourierreihe

$$V(\vec{r}) = \sum_{g} V_g \cdot \exp(i\vec{g}\cdot\vec{r}) \qquad (4.8)$$

entwickelt werden, wobei summiert wird über alle Vektoren $\vec{g}$ des reziproken Gitters. Die Fourierkoeffizienten V_g nennt man Strukturpotentiale. V_o ist das mittlere innere Potential.

Für das sich in diesem Potential fortbewegende Elektron muß die zeitunabhängige Schrödinger-Gleichung gelöst werden. Unter Berücksichtigung der relativistischen Effekte lautet diese z. B. nach Kasper [23]:

$$\Delta \Psi(\vec{r}) + \frac{2 \cdot m \cdot e}{\hbar^2} \cdot [E + V(\vec{r})] \cdot \Psi(\vec{r}) = 0 \qquad (4.9)$$

Mit der Abkürzung $\epsilon = e/(2m_o c^2)$ ist $m = m_o \cdot (1 + 2\epsilon E_o)$ (4.10)

und $$E = E_o \cdot (1 + \epsilon E_o)/(1 + 2\epsilon E_o) \; . \qquad (4.11)$$

E_o ist die Beschleunigungsspannung, die die Elektronen durchlaufen haben. Für die Gesamtwellenfunktion $\Psi(\vec{r})$ innerhalb des Kristalles setzt man eine Linearkombination von Blochwellwen $\psi^{(j)}(\vec{r})$ an, mit:

$$\Psi(\vec{r}) = \sum_j \alpha^{(j)} \cdot \psi^{(j)}(\vec{r}) \qquad (4.12)$$

In jeder Blochwelle $\psi^{(j)}$ läßt sich wieder ein Faktor auf der Basis des reziproken Gitters in eine Fourierreihe entwickeln, insgesamt ist also:

$$\psi^{(j)}(\vec{r}) = \sum_g C_g{}^{(j)} \cdot \exp\{i(\vec{k}^{(j)} + \vec{g}) \cdot \vec{r}\} \qquad (4.13)$$

Diese Welle kann somit als eine Überlagerung von ebenen Wellen, die in die Richtungen $(\vec{k}+\vec{g})$ laufen, betrachtet werden. Die $\alpha^{(j)}$ bezeichnet man als Blochwellen-Erregungskoeffizienten und die $C_g{}^{(j)}$ als Blochwellen-Koeffizienten. Die Letzteren stellen die Amplituden der in den Blochwellen enthaltenen ebenen Partialwellen dar.

Wenn gemäß

$$U_o = (2\cdot m\cdot e / \hbar^2)\cdot V_o \quad \text{und} \quad U_g = (2\cdot m\cdot e / \hbar^2)\cdot V_g \qquad (4.14)$$

die modifizierten Strukturpotentiale U_o und U_g, und gemäß

$$\chi = h^{-1}\cdot\sqrt{2\cdot m\cdot e\cdot E} \quad \text{und} \quad K = \sqrt{\chi^2 + U_o} \qquad (4.15)$$

die Vakuum-Wellenzahl χ und die mittlere Wellenzahl im Kristall K eingeführt wird, dann ergibt sich mit dem obigen Ansatz aus der Schrödingergleichung:

$$\sum_g \left\{ [K^2 - (\vec{k}^{(j)}+\vec{g})^2]\cdot C_g^{(j)} + \sum_{h\neq g} U_{g-h}\cdot C_h^{(j)} \right\} \cdot \exp[i(\vec{k}^{(j)}+\vec{g})\cdot\vec{r}] = 0 \qquad (4.16)$$

Wegen der Unabhängigkeit der Exponentialterme müssen die Koeffizienten der Summe einzeln verschwinden. Dies führt zu dem Grundgleichungssystem der dynamischen Theorie:

$$[K^2 - (\vec{k}^{(j)}+\vec{g})^2]\cdot C_g^{(j)} + \sum_{h\neq g} U_{g-h}\cdot C_h^{(j)} = 0 \qquad (4.17)$$

Jedem möglichen Beugungsreflex g ist eine Gleichung zugeordnet. Da in den Experimenten immer nur endlich viele Reflexe auftreten (häufig sind es sogar nur zwei) genügt es, die Blochwellen durch eine Überlagerung von n ebenen Wellen darzustellen. n beschreibt die Zahl der in der Rechnung berücksichtigten Reflexe und wird bestimmt durch die Einstrahlrichtung und die Genauigkeitsanforderungen.

Das Gleichungssystem (4.17) läßt sich in Matrizenform schreiben als

$$\mathbf{A}^{(j)}\cdot\left\{C_g^{(j)}\right\} = 0 \qquad (4.18)$$

wobei $\mathbf{A}^{(j)}$ eine n x n Matrix mit den Elementen

$$A_{gg} = K^2 - (\vec{k}^{(j)}+\vec{g})^2 \qquad (4.19)$$

und

$$A_{gh} = U_{g-h} \quad \text{für } h\neq g$$

darstellt, und $\{C_g^{(j)}\}$ einen Spaltenvektor mit den Komponenten $C_g^{(j)}$ ist. Die Bedingung für eine nichttriviale Lösung des durch (4.17) oder (4.18) beschriebenen Gleichungssystems ist:

$$\det \mathbf{A}^{(j)} = 0 \ . \qquad (4.20)$$

Dies ist die Dispersionsgleichung der dynamischen Theorie. Sie liefert weder den speziellen Satz von Ausbreitungsvektoren $\vec{k}^{(j)}$ der Blochwellen, der sich für eine bestimmte Einschußrichtung der Elektronen ergibt, noch die Blochwellen-Koeffizienten $C_g^{(j)}$. Für ein bekanntes K^2 gibt sie aber $k_z^{(j)}$ als Funktion von $k_x^{(j)}$ und $k_y^{(j)}$ an. Die geometrische Darstellung dieses Zusammenhanges ist die Dispersionsfläche.

Aus den Stetigkeitsbedingungen für die Wellenfunktion an der Eintrittsfläche in den Kristall ergibt sich zusätzlich, daß die Tangentialkomponenten der Wellenvektoren der aus dem Vakuum einfallenden Welle $\vec{X}$ und der Blochwellen $\vec{k}^{(j)}$ gleich sein müssen. Mit dem Oberflächen-Normalenvektor $\vec{n}$ kann man schreiben:

$$\vec{n} \times (\vec{k}^{(j)} - \vec{X}) = 0 \qquad (4.21)$$

Wählt man die z-Achse parallel zur einwärtsgerichteten Oberflächennormalen, dann reduziert sich (4.20) auf 2n Bestimmungsgleichungen für die Longitudinalkomponenten $k_z^{(j)}$.

Die typischen Beschleunigungsspannungen in der Elektronenmikroskopie liegen bei 10^4 bis 10^5 Volt oder sogar noch darüber, während die Strukturpotentiale der durchstrahlten Kristalle nur einige Volt betragen. Es ist also zu erwarten, daß $|\vec{k}^{(j)}| \approx K$. Außerdem ist für die in Frage kommenden Beugungsobjekte immer $K >> |\vec{g}|$. Mit der daraus ableitbaren Hochenergienäherung

$$K^2 - \vec{k}^{(j)2} = 2K \cdot (K - |\vec{k}^{(j)}|) \qquad (4.22)$$

oder $$K^2 - (\vec{k}^{(j)}+\vec{g})^2 = 2K \cdot (K - |\vec{k}^{(j)}+\vec{g}|)$$

reduziert sich (4.20) auf n algebraische Gleichungen, in denen bei Vorwärtsstreuung negative Vorzeichen für die $k_z^{(j)}$ ausgeschlossen werden.

Beschränkt man sich schließlich auf den symmetrischen Laufall und läßt nur Reflexe der nullten Lauezone zu, was in einem Koordinatensystem mit einer zur einwärtsgerichteten Kristalloberflächen-Normalen parallelen z - Achse bedeutet, daß die z-Komponente der betrachteten Gittervektoren immer gleich Null sein muß:

$$g_z = 0 \ , \qquad (4.23)$$

dann läßt sich die Gleichung (4.18) in ein Eigenwertproblem überführen. Nach Metherell [24] kann man dieses in folgender Form darstellen:

$$\mathbf{B} \cdot \left\{C_g^{(j)}\right\} = \gamma^{(j)} \cdot \left\{C_g^{(j)}\right\} \qquad (4.24)$$

$$\text{mit} \qquad \gamma^{(j)} = k_z^{(j)} - K_z$$

$\mathbf{B}$ ist die n x n Matrix mit den Elementen

$$B_{gg} = s_g$$

$$\text{und} \quad B_{gh} = U_{g-h}/(2K \cdot \cos(\theta_{g-h})) \qquad \text{für } g \neq h \ . \qquad (4.25)$$

s_g ist wieder die zur einwärtsgerichteten Kristalloberflächennormalen parallele Komponente des Anregungsfehlers $\vec{s}_g$ und θ_{g-h} ist der Winkel zwischen dem Vektor $\vec{k}+(\vec{g}-\vec{h})$ und der z - Achse. Die $\left\{C_g^{(j)}\right\}$ ergeben sich als die den Eigenwerten $\gamma^{(j)}$ zugeordneten Eigenvektoren. Die absoluten Werte der Blochwellenkoeffizienten erhält man durch die Normierungsbedingung:

$$\sum_g C_g(i) \cdot C_g(j)^* = \delta_{ij} \qquad (4.26)$$

Aus den Stetigkeitsbedingungen an der Kristalloberfläche ergibt sich zusätzlich für die Blochwellen-Erregungsamplituden $\alpha^{(j)}$:

$$\alpha^{(j)} = C_o(j)^* \qquad (4.27)$$

Die Beugung an einem Kristall kann man in der Weise verstehen, daß eine einfallende Elektronenwelle in einen Satz von n Blochwellen aufgespalten wird, die sich mit unterschiedlichen Wellenvektoren ausbreiten und die miteinander interferieren können. An der Austrittsfläche z = D werden die Blochwellen wieder in ebene Wellen zerlegt. Alle zu einem Gittervektor $\vec{g}$ gehörigen Partialwellen superponieren dann zur Wellenfunktion des entsprechenden Reflexes. Dessen Intensität I_g errechnet sich somit aus den Amplituden der zugehörigen ebenen Partialwellen und den Phasendifferenzen gemäß:

$$I_g(D) = \left| \sum_j C_o(j)^* \cdot C_g(j) \cdot \exp(i \cdot k_z(j) \cdot D) \right|^2 \qquad (4.28)$$

IV.3 Berücksichtigung von Absorptionserscheinungen in der dynamischen Theorie

Die wichtigsten inelastischen Wechselwirkungen, die beim Durchstrahlen eines Kristalles mit schnellen Elektronen auftreten können, sind:

a) die Anregung von Gitterschwingungen (Phononen)

b) die Anregung einzelner Elektronen

c) die Anregung von Plasmaschwingungen (Plasmonen).

Neben Energieverlusten können diese Effekte zu einem Herausstreuen von Elektronen aus den durch die elastischen Wechselwirkungen vorgegebenen Richtungen, das heißt zur Bildung eines diffusen Streuuntergrundes im Beugungsbild führen. Für die einzelnen Beugungsreflexe kann man die beim Durchlaufen des Kristalles damit verbundene Schwächung als Absorption betrachten. Im Gegensatz zur echten Absorption handelt es sich aber hier wegen der Erhaltung der Gesamtzahl der Elektronen nur um Streuabsorption, die bei geeigneter Einbringung einer Blende in den Strahlengang eines Elektronenmikroskopes zu einem Streuabsorptionskontrast führt. Da die Stärke der Absorption in Kristallen abhängig von der Einschußrichtung der Elektronen ist, spricht man von "anomaler Absorption".

Nachdem Yoshioka [25] formal gezeigt hatte, daß bei der Streuung von Elektronen in Kristallen sich der Einfluß inelastischer Wechselwirkungen durch einen imaginären Zusatzterm zum reellen Kristallpotential beschreiben läßt, konnten Hashimoto, Howie und Whelan [26] durch ein phänomenologisch eingeführtes, geeignetes imaginäres Potential den Effekt der anomalen Absorption erklären. Obwohl sich durch die Verwendung eines komplexen Kristallpotentiales die experimentellen Ergebnisse der Elektronenbeugung gut darstellen lassen, ist die phänomenologische Beschreibungsweise, wie sie nachfolgend dargestellt wird, nur eine Näherung für eine in Wirklichkeit sehr komplizierte Situation.

Auf Grenzen dieses Modelles weist zum Beispiel Kasper [27] hin. Unmittelbar sichtbar werden solche Grenzen auch bei den in Abschnitt VI.6 der vorliegenden Arbeit beschriebenen Berechnungen zum Critical-Voltage Effekt bei der Beugung im konvergenten Bündel.

Als besonders geeignet für die Beschreibung der Absorptionserscheinungen erweist sich das Blochwellenmodell. Dies ergibt sich, wenn man die lokale Verteilung des Auftretens inelastischer Streuprozesse im Kristall betrachtet. Während die Anregung von Plasmonen in erster Näherung gleichverteilt auftritt, wird die Anregung von Einzelelektronen zu den Atomkernen hin wahrscheinlicher und die Phononenanregung schließlich, die zudem den Hauptteil der inelastischen Wechselwirkungen ausmacht, findet nur in der unmittelbaren Umgebung der Kerne statt (Humphreys und Hirsch [28], Radi [29]). In Übereinstimmung mit ihren unterschiedlichen mittleren kinetischen Energien, die durch die Wellenvektoren $\vec{k}^{(j)}$ bestimmt sind, müssen die Blochwellen unterschiedliche mittlere potentielle Energien und damit mehr oder weniger an den Orten der Atomkerne konzentrierte Intensitätsverteilungen aufweisen. Mit der oben beschriebenen Verteilung der Wahrscheinlichkeit für inelastische Streuprozesse und den unterschiedlichen Intensitätsverteilungen der Blochwellen ergibt sich, daß diese verschieden stark absorbiert werden. Die anomale Absorption läßt sich nun dadurch erklären, daß die Blochwellen einerseits unterschiedlich absorbiert werden und daß andererseits ihre Erregung sehr empfindlich von der Einschußrichtung abhängig ist.

Das die inelastische Streuung beschreibende, imaginäre Zusatzpotential $V'(\vec{r})$ ist aus den oben beschriebenen Gründen wie das reelle Kristallpotential $V(\vec{r})$ periodisch mit dem Gitter. Dadurch läßt sich auch das komplexe Gesamtpotential $V(\vec{r})+i\cdot V'(\vec{r})$, analog zu Gleichung (4.8) in eine Fourierreihe entwickeln:

$$V(\vec{r})+i\cdot V'(\vec{r}) = \sum_{g} (V_g+iV'_g)\cdot\exp(i\vec{g}\cdot\vec{r}) \qquad (4.29)$$

Die V'_g werden entsprechend den reellen Strukturpotentialen als Absorptionspotentiale bezeichnet. V'_o ist das mittlere Absorptionspotential. Die Absorptionspotentiale sind von der Ge-

schwindigkeit der einfallenden Elektronen abhängig und werden deshalb, wie auch in der vorliegenden Arbeit, meistens für 100 keV - Elektronen angegeben. Die Umrechnung auf andere Beschleunigungsspannungen erfolgt nach Radi [29] oder Howie [30] durch:

$$V'_g(E_o) = V'_g(100\ kV) \cdot \frac{v(100\ kV)}{v(E_o)} \qquad (4.30)$$

$v(100\ kV)$ und $v(E_o)$ sind die Elektronengeschwindigkeiten bei 100 kV und bei der Beschleunigungsspannung E_o.

Setzt man die komplexen Strukturpotentiale in die Schrödingergleichung (4.9) ein, dann ergeben sich aus der Dispersionsgleichung n komplexe Wellenvektoren $\vec{k}^{(j)}+i\vec{q}^{(j)}$. Aus den Kontinuitätsbedingungen an der Kristalloberfläche ergibt sich (4.22) und ferner, daß die $\vec{q}^{(j)}$ immer parallel zur einwärtsgerichteten Kristalloberflächennormalen liegen. Legt man den Koordinatenursprung in die Kristalloberfläche, dann wird aus (4.13) die gedämpfte Blochwelle

$$\psi^{(j)}(r) = \sum_g C_g^{(j)} \cdot \exp[i(\vec{k}^{(j)}+\vec{g}) \cdot \vec{r}] \cdot \exp(-\vec{q}^{(j)} \cdot \vec{r}) \qquad (4.31)$$

Analog zu (4.28) ergibt sich für die Intensität I_g im Beugungsreflex nach Durchlaufen der Kristalldicke D :

$$I_g(D) = \left| \sum_j C_o^{(j)*} \cdot C_g^{(j)} \cdot \exp(ik_z^{(j)} \cdot D) \cdot \exp(-q^{(j)} \cdot D) \right|^2 \qquad (4.32)$$

Das Verhältnis V'_g/V_g ist bei hohen Beschleunigungsspannungen immer klein und für Kristalle mit nicht zu großen Kernladungszahlen sogar kleiner als 0,1 (Humphreys und Hirsch [28] oder Radi [29]). Es genügt deswegen in den meisten Fällen, die Absorptionsvektoren $\vec{q}^{(j)}$ durch eine Störungsrechnung zu ermitteln, bei der die aus dem absorptionsfreien Problem berechneten Blochwellenkoeffizienten $C_g^{(j)}$ und die Wellenvektoren $\vec{k}^{(j)}$ unverändert bleiben. Sie liefert nach Humphreys [31]:

$$|\vec{q}^{(j)}| = \frac{1}{2K_z} \sum_g \sum_h C_g^{(j)*} \cdot U'_{g-h} \cdot C_h^{(j)} \qquad (4.33)$$

Für Kristalle, die aus schweren Atomen aufgebaut sind, oder wenn hohe Genauigkeit der Ergebnisse gefordert wird, wie zum Beispiel bei Berechnungen zum Critical - Voltage Effekt, kann es erforderlich sein, das Eigenwertproblem für die die komplexen Strukturpotentiale enthaltende Matrix streng zu lösen (Hewat und Humphreys [32], Goodman [33]). Nach Metherell [24] geht dann die Gleichung (4.24) über in:

$$\mathbf{G} \cdot \left\{ C_g^{(j)} \right\} = (\gamma^{(j)} + i \cdot q^{(j)}) \cdot \left\{ C_g^{(j)} \right\} \qquad (4.34)$$

wobei wieder $\gamma^{(j)} = k_z^{(j)} - K_z$ ist.

Die komplexe Matrix $\mathbf{G}$ enthält die Elemente

$$G_{gg} = s_g + i(U'_o / 2K \cdot \cos\theta_o)$$

$$G_{gh} = (U_{g-h} + i \cdot U'_{g-h}) / (2K \cdot \cos\theta_{g-h}) \quad \text{für } g \neq h \,. \qquad (4.35)$$

Für zentrosymmetrische Kristalle gilt $(U_g + iU'_g) = (U_{-g} + iU'_{-g})$, so daß die Matrix $\mathbf{G}$ komplex-symmetrisch ist. Nach Humphreys [31] sind dann die Eigenwerte komplex und die Eigenvektoren komplex orthogonal mit

$$\sum_g C_g^{(i)} \cdot C_g^{(j)} = 0 \quad \text{für } i \neq j, \qquad (4.36)$$

$$\text{wenn} \quad (\gamma^{(i)} + iq^{(i)}) \neq (\gamma^{(j)} + iq^{(j)})$$

Die Vorzeichen der Absorptionspoteniale V'_g sind immer gleich denen der zugehörigen reellen Strukturpotentiale V_g zu wählen (siehe auch Thomas und Humphreys [34]).

Die im Rahmen der vorliegenden Arbeit durchgeführten Vielstrahlrechnungen beruhen auf der numerischen Lösung dieses Eigenwertproblemes. Im Laufe der Rechnungen zeigte sich, daß in der ersten Gleichung (4.35) , abweichend von Metherell [24], das positive Vorzeichen stehen muß. Einzelheiten des numerischen Rechenverfahrens werden im Teil A des Anhangs diskutiert.

IV.4 Die Zweistrahlnäherung der dynamischen Theorie

Die Behandlung von Vielstrahlproblemen der dynamischen Theorie ist kompliziert und erfordert den Einsatz numerischer Datenverarbeitung. Der Aufwand an Rechenzeit steigt dabei mit zunehmender Zahl n der zu berücksichtigenden Beugungsreflexe etwa proportinal zu n^2 bis n^3 an. Insbesondere bei der Berechnung von Vielstrahl - rocking curves (siehe Abschnitt IV.7), bei denen das Eigenwertproblem für eine große Zahl von Einschußrichtungen gelöst werden muß, ergibt sich daraus eine obere Grenze für n.

Eine zentrale Rolle in der Praxis der Elektronenbeugung spielt die Zweistrahlnäherung. Bei ihr geht man davon aus, daß man neben dem Primärstrahl nur noch einen Beugungsreflex in der Rechnung zu berücksichtigen hat. Dies ist im Energiebereich bis 100 keV häufig eine ausreichende Beschreibung der experimentellen Gegebenheiten. Ihre Bedeutung ergibt sich daraus, daß für den Zweistrahlfall die oben genannten Eigenwertprobleme noch analytisch lösbar sind, und die Auswertung vieler Beugungsaufnahmen dadurch wesentlich erleichtert wird. Außerdem ist sie sehr oft hilfreich bei der Analyse komplizierter Zusammenhänge bei Vielstrahlproblemen.

Kossel und Möllenstedt [35] berichteten im Jahr 1939 über Elektronenbeugungsaufnahmen im konvergenten Bündel, die durch die kinematische Theorie nicht befriedigend gedeutet werden konnten. Erst durch eine von C. H. Mac Gillavry [37] auf der Grundlage des absorptionsfreien Zweistrahlfalles der dynamischen Theorie durchgeführte Berechnung der Beugungsintensitäten I_g im Reflex und I_o im Nullstrahl gelang die Auswertung dieser Aufnahmen. Die von Mac Gillavry für die Beugung an einer planparallen Platte der Dicke D, bei etwa zur Kristalloberfläche senkrechter Inzidenz der Elektronen und bei einer für alle Winkel konstanten eingestrahlten Intensität von 1, berechneten Intensitäten können nach Kasper [38] dargestellt werden als:

$$I_o(D) = 1 - I_g(D)$$

(4.37)

$$I_g(D) = \frac{1}{1+W^2} \cdot \sin^2\left(\frac{\pi \cdot D}{\xi_g} \cdot \sqrt{1+W^2}\right)$$

mit den im Abschnitt IV.1 (Gleichungen (4.5) und (4.6)) gegebenen Definitionen der Extinktionslänge ξ_g und des Selektionsfehlers W. Ein Vergleich mit der Gleichung (4.7) zeigt, daß die kinematische Theorie für große Anregungsfehler s_g eine sehr gute Näherung liefert. In der dynamischen Theorie ergibt sich die Extinktionslänge ξ_g aus dem Strukturpotential V_g durch:

$$\xi_g = \frac{\pi \cdot \hbar^2 \cdot K}{m \cdot e \cdot |V_g|} \qquad (4.38)$$

Unter zusätzlicher Berücksichtigung der anomalen Absorptionserscheinungen wurde von Hashimoto, Howie und Whelan [26] folgende Lösung des Zweistrahlproblemes angegeben:

$$I_o(D) = \frac{e^{-\mu_o \cdot D}}{2(1+W^2)} \cdot \left\{ (1+2W^2) \cdot \cosh\left(\frac{\mu_g \cdot D}{\sqrt{1+W^2}}\right) + 2W \cdot \sqrt{1+W^2} \cdot \sinh\left(\frac{\mu_g \cdot D}{\sqrt{1+W^2}}\right) + \cos\left(\frac{|U_g| \cdot D \cdot \sqrt{1+W^2}}{K}\right) \right\}$$

(4.39)

$$I_g(D) = \frac{e^{-\mu_o \cdot D}}{2(1+W^2)} \cdot \left\{ \cosh\left(\frac{\mu_g \cdot D}{\sqrt{1+W^2}}\right) - \cos\left(\frac{|U_g| \cdot D \cdot \sqrt{1+W^2}}{K}\right) \right\}$$

Die Absorptionskoeffizienten μ_o und μ_g ergeben sich aus den Absorptionspotentialen U_o' und U_g' durch:

$$\mu_o = \frac{|U_o'|}{K} \qquad \mu_g = \frac{|U_g'|}{K} \qquad (4.40)$$

IV.5 Übergang zum Vielstrahlfall der systematischen Reihe

Ein Beugungsreflex wird bei einer gegebenen Einfallsrichtung der Elektronen umso mehr angeregt, je näher sein reziproker Gitterpunkt an der Ewaldkugel liegt, das heißt je kleiner sein Anregungsfehler ist. Bei den in der Elektronenbeugung gegebenen Wellenlängen und Netzebenenabständen folgt daraus, daß man immer eine große Zahl von Reflexen vorliegen hat, die allerdings mehr oder weniger stark angeregt sind. Da die Intensitäten in den Beugungsreflexen neben den Anregungsfehlern aber auch noch von den jeweiligen Strukturpotentialen und von der Kristalldicke abhängig sind, ist nur ein kleiner Teil von ihnen mit merklicher Intensität beobachtbar. Auf der Grundlage der im Abschnitt IV.4 dargestellten Ergebnisse von Zweistrahlrechnungen, können Elektronenbeugungsaufnahmen in relativ einfacher Weise ausgewertet werden. In Abschnitt IV.7 wird ein solches Verfahren für die Beugung im konvergenten Bündel näher betrachtet. Der Zweistrahlfall liegt im Experiment dann vor, wenn neben dem Primärstrahl, unabhängig von der Kristalldicke, nur noch in einem Beugungsreflex hohe Intensität vorliegt. Er kann nach dem oben gesagten immer nur näherungsweise erfüllt sein. Im konkreten Anwendungsfall taucht also jeweils die Frage nach der Gültigkeit der Zweistrahlnäherung, beziehungsweise nach dem mit ihr verbundenen Fehler der Auswertung auf.

Mit Sicherheit nicht mehr anwendbar ist die Zweistrahlnäherung auf Beugungsexperimente, bei denen die Einfallsrichtung der Elektronen in etwa mit nieder indizierten Zonenachsen übereinstimmt, denn dann treten im allgemeinen viele starke Beugungsreflexe auf. In diesen Fällen ist eine Vielstrahlrechnung für eine genaue Interpretation der Diagramme unumgänglich. Dabei ist unbekannt, welche Reflexe in der Rechnung noch berücksichtigt werden müßen. Ein zuverlässige Aussage darüber läßt sich nur dadurch erreichen, daß man ihre Zahl sukzessive solange erhöht, bis sich keine wesentlichen Änderungen der Ergebnisse mehr auftreten (siehe z.B. Basche [39]). Solche Zonenachsen-

Vielstrahlprobleme sollen hier aber nicht weiter betrachtet werden.

Von besonderem Interesse in der dynamischen Theorie - und auch im Rahmen der vorliegen Arbeit - ist der "Vielstrahlfall der systematischen Reihe". Er erlaubt es, die dynamischen Vielstrahlwechselwirkungen in einer systematischen Reihe von Reflexen in noch übersichtlicher Weise zu studieren und kann, wie weiter unten dargestellt, besonders auch dann angewendet werden, wenn die Zweistrahlnäherung beim Übergang zu hohen Beschleunigungsspannungen ihre Gültigkeit verliert. Außerdem kann aus ihm ein Näherungsausdruck abgeleitet werden für denjenigen Wert der Beschleunigungsspannung, bei dem die Mehrstrahleffekte einsetzen.

Als eine "systematische Reihe" bezeichnet man die Gesamtheit der Reflexe, die bei der Beugung an einer einzigen Netzebenenschar erzeugt werden, die man also durch die reziproken Gittervektoren ..., $-\vec{g}$, 0, $\vec{g}$, $2\vec{g}$, $3\vec{g}$,... beschreiben kann. Mit der Anregung eines starken Beugungsreflexes ist, wie oben beschrieben, zwangsläufig das Auftreten weiterer, zumindest schwacher Nebenreflexe verbunden. Diese unterteilt man in systematische Nebenreflexe - zu ihnen zählen alle Reflexe der systematischen Reihe, welcher der stark angeregte Reflex angehört - und in nichtsystematische Nebenreflexe. Beim Kippen des Kristalles um eine durch einen reziproken Gittervektor $\vec{g}$ gegebene Richtung bleibt der Betrag des Anregungsfehlers für alle Reflexe der systematischen Reihe $n\cdot\vec{g}$ konstant (siehe Abb. 24a). Dagegen kann es möglich sein, durch das Kippen eine Orientierung zu finden, bei der der Betrag des Anregungsfehlers für alle nichtsystematischen Nebenreflexe groß wird. Eine Mitanregung der systematischen Nebenreflexe läßt sich aber prinzipiell nicht vermeiden, und kann deswegen bei der Anwendung der Zweistrahlnäherung nicht immer vernachlässigt werden.

Eine Möglichkeit zur Berücksichtigung schwacher Nebenreflexe im Rahmen der Zweistrahltheorie bietet die sogenannte Bethe - Korrektur. In seiner zweiten Näherung schlug Bethe [17] vor, den Einfluß schwacher Nebenreflexe durch Zusatzpotentiale zu den in die Zweistrahlrechnung eingehenden Strukturpotentiale V_o,

$V_{\pm g}$ zu berücksichtigen. Vernachlässigt man diese Korrektur für das ohnehin große mittlere, innere Potential, dann hat man in den Gleichungen (4.17) die modifizierten Strukturpotentiale U_g und U_{-g} zu ersetzen durch U_g^B und U_{-g}^B mit:

$$U_g^B = U_g - \sum_{h\neq 0,g} \frac{U_h \cdot U_{g-h}}{K^2 - (\vec{K}+\vec{h})^2}$$

$$U_{-g}^B = U_{-g} - \sum_{h\neq 0,g} \frac{U_{-h} \cdot U_{h-g}}{K^2 - (\vec{K}+\vec{h})^2} \qquad (4.41)$$

Bei zentrosymmetrischen Kristallen vereinfacht sich dieses, wenn man den Reflex g anregt und nur eine Korrektur durch die systematischen Nebenreflexe h durchführt, auf:

$$U_{-g}^B = U_g^B = U_g - \sum_{h\neq 0,g} \frac{U_h \cdot U_{g-h}}{\vec{h} \cdot (\vec{g}-\vec{h})} \qquad (4.42)$$

Geht man zu höheren Beschleunigungsspannungen über, dann verkleinern sich die Anregungsfehler der systematischen Nebenreflexe, da der Radius der Ewaldkugel mit $K = ((2me/\hbar^2) \cdot E)^{1/2}$ steigt. Gleichzeitig ändern sich aber auch die Nichtdiagonalelemente $U_{g-h}/2K$ der Matrix in Gleichung (4.24) proportional zu $((2me/\hbar^2)/E)^{1/2}$. Insgesamt beobachtet man eine starke Zunahme der Intensität in den Nebenreflexen mit steigenden Elektronenenergien. Die Zweistrahlnäherung verliert immer mehr an Gültigkeit und kann auch bei Vornahme der Bethe-Korrektur, die schwache Nebenreflexe voraussetzt, nicht mehr angewendet werden. Sie muß durch eine Vielstrahlrechnung für die systematische Reihe ersetzt werden, die sich nur numerisch durchführen läßt. Bei wenigen hochsymmetrischen Problemstellungen können aber auch analytische Lösungen angegeben werden (siehe Serneels und Gevers [40] oder Howie [30]). Diese werden im Abschnitt VI.2 im Zusammenhang mit dem Critical-Voltage Effekt noch betrachtet.

Der Übergang zum Mehrstrahlfall läßt sich im Experiment nicht ohne weiteres erkennen. Es kann zum Beispiel die Kristall-

dicke ein ganzzahliges Vielfaches der Extinktionslänge eines Nebenreflexes sein und dadurch ein reiner Zweistrahlfall vorgetäuscht werden. Ausdrücke zur Abschätzung der Spannung, bei der die Mehrstrahleffekte einsetzen, werden von Metherell [24] und von Whelan und Humphreys [41] angegeben. Diese beruhen darauf, daß die Mehrstrahleffekte besonders stark vom Strukturpotential der ersten Ordnung V_g und vom Netzebenenabstand d_g abhängig sind. Sie können aber, da die höheren Strukturpotentiale nicht berücksichtigt sind, immer nur einen groben Anhaltspunkt liefern. Nach Metherell bricht die Zweistrahlnäherung zusammen, wenn:

$$\frac{2|U_g(E_o)|}{g^2} > 1 \qquad (4.43)$$

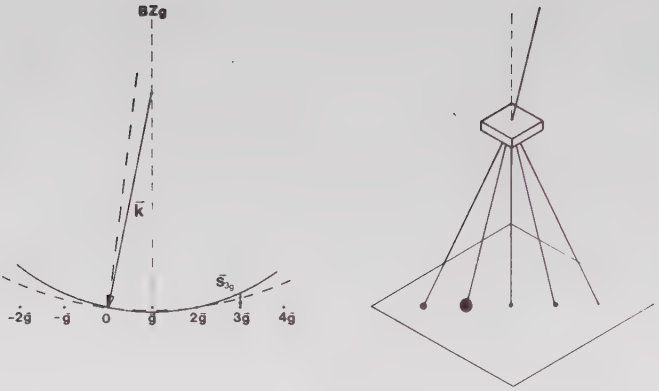
was sich auch schreiben läßt als

$$E_o > \frac{m_o \cdot c^2}{e} \cdot \left(\frac{g^2}{2|U_g(0)|} - 1 \right)$$

$U_g(0)$ ist das nicht relativistisch korrigierte, modifizierte Strukturpotential. Whelan und Humphreys geben dagegen für die Einsatzspannung der Mehrstrahleffekte an:

$$\frac{|U_g(E_o)|}{g^2} > 1 \qquad (4.44)$$

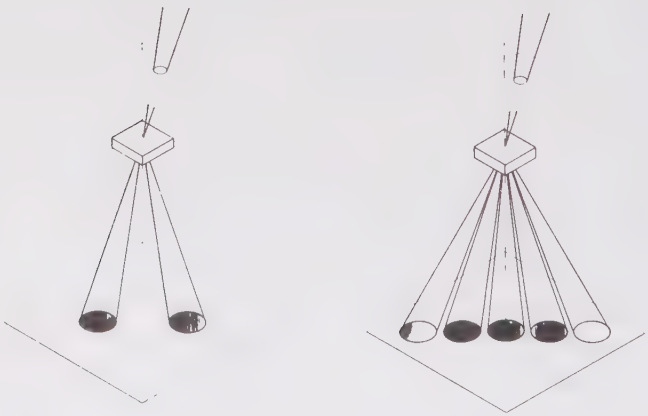
Die Gültigkeit dieser Aussagen für die Beugung im konvergenten Bündel wird in den im Rahmen der vorliegenden Arbeit durchgeführten Untersuchungen überprüft.



a) b)

Abb. 24: a) Ewaldkugel bei exakter Anregung der zweiten Ordnung. Beim Übergang zu höheren Beschleunigungsspannungen vergrößert sich der Radius der Ewaldkugel (gestrichelt eingezeichnet). Dadurch verkleinert sich der Anregungsfehler für die Nebenreflexe der systematischen Reihe.

b) Punkt-Beugungsdiagramm beim Vielstrahlfall der systematischen Reihe.



a) b)

Abb. 25: a) Beugung im konvergenten Bündel im Zweistrahlfall.

b) Beim Übergang zum Vielstrahlfall der systematischen Reihe treten weitere Reflexscheiben auf.

IV.6 Elektronenbeugung im konvergenten Bündel

Die Intensität in den einzelnen Beugungsreflexen ist abhängig von der Einschußrichtung der Elektronen. Die "Beugung im konvergenten Bündel" nach Kossel und Möllenstedt [35,36] stellt eine elegante Methode dar, diese Abhängigkeit zu beobachten, ohne dabei den Kristall oder den Beleuchtungsstrahl kippen zu müssen. Wie schon in Abschnitt II.4.b beschrieben, wird bei diesem Verfahren das Objekt mit einem konvergenten anstatt mit dem üblichen, nahezu parallelen Elektronenbündel bestrahlt. Dadurch ist es möglich, die Reflexintensität gleichzeitig für einen ganzen Winkelbereich von Einschußrichtungen zu registrieren. Bei ausreichend dünnen Kristallen erhält man im Beugungsbild statt jedes einzelnen Punktes einen scheibenförmigen Beugungsreflex (siehe Abb. 25).

Nach Kasper [16] kann man sich das einfallende konvergente Elektronenbündel in ebene Partialwellen zerlegt denken und auf jede einzelne von ihnen die dynamische Theorie in der beschriebenen Form anwenden. Für den Zweistrahlfall hat Kasper gezeigt, daß unter der Bedingung der inkohärenten Beleuchtung des Kristalles, die durch $\vec{k}_o$ gekennzeichnete Partialwelle nur in den Richtungen $\vec{k}_o$ und $\vec{k}_o+\vec{g}$ zur Intensität im Beugungsbild beiträgt. Es finden dann also keine Interferenzen zwischen den einzelnen zu verschiedenen einfallenden Partialwellen gehörenden transmittierten oder gestreuten Wellen statt, sondern jeder Einschußrichtung ist die Intensität in genau einem Punkt pro Beugungsscheibe zugeordnet. Die Variation der Intensität in einer Scheibe gibt die Abhängigkeit der Intensität in dem der Scheibe zugeordneten Beugungsreflex von der Einschußrichtung wieder. Die von Kasper [16] durchgeführten Rechnungen sind im Teil B des Anhanges ausführlicher wiedergegeben.
Ausgehend von der Winkelkohärenzbedingung läßt sich als Voraussetzung für eine inkohärente Beleuchtung des Objektes angeben:

$$|\vec{k} - \vec{k}'|_{max} \cdot R = 2 \cdot |\vec{k}| \cdot R \cdot \alpha >> 1 \qquad (4.45)$$

α ist die Apertur des Primärbündels. Sie liegt bei den hier durchgeführten Untersuchungen zwischen 10^{-2} und 10^{-3} rad. R ist der Radius des als kreisförmig angenommenen, bestrahlten Objektbereiches. Für Elektronenenergien oberhalb von 300 keV ergibt sich aus (4.45), daß R viel größer als 3 Å sein muß. Dies ist bei dem vorhandenen Aufbau der Anlage der Fall. Der Durchmesser der durch die Linse auf dem Kristall erzeugten Elektronensonde liegt zwischen 5000 und 10000 Å. Dies konnte durch Schattenmikroskopie an abgedünntem Blattgold, das auf feinste Objektträgernetzchen präpariert war, gemessen werden. Solch eine große Elektronensonde erfordert zwar Einkristalle hoher Güte, ist aber andererseits problemlos hinsichtlich der bei kleinen Sonden empfindlich störenden Kontamination (Lehmpfuhl [42]).

Die Gleichungen (4.37) bzw. (4.39) beschreiben für den Zweistrahlfall die Intensität in den Beugungsreflexen in Abhängigkeit von der Kristalldicke und von der Einfallsrichtung der Elektronen. Die Letztere wird dabei durch den Selektionsfehler W charakterisiert. Zwischen W und dem Einfallswinkel, das heißt dem Winkel zwischen einfallendem Elektronenstrahl und reflektierenden Netzebenen, und damit auch zwischen W und der Koordinate parallel zum reziproken Gittervektor $\vec{g}$ in der Beobachtungsebene, besteht in sehr guter Näherung ein linearer Zusammenhang. Aus (4.37) bzw. (4.39) kann man die Einfallsrichtungen oder die geometrischen Orte in der Beobachtungsebene bestimmen, für die die Intensität im Beugungsreflex ein Minimum durchläuft. Nach Gaukler und Graff [43] kann der Einfluß der Absorptionspotentiale in (4.39) auf diese Lagen im Reflex im Rahmen der Meßgenauigkeit gut vernachlässigt werden. Dieses wird auch durch neuere Berechnungen von Gensler [6] bestätigt. Für die Lage der Intensitätsminima in der Reflexscheibe ergibt sich:

$$\varepsilon_p = \pm d_g \sqrt{\frac{p^2}{D^2} - \frac{m^2 \cdot e^2 \cdot V_g^2}{\pi^2 \cdot \hbar^4 \cdot K^2}} \qquad (4.46)$$

oder

$$\varepsilon_p = \pm d_g \sqrt{\frac{p^2}{D^2} - \frac{1}{\xi_g^2}}$$

ε_p ist der Winkel zwischen dem Intensitätsminimum mit der ganzzahligen Laufzahl p und der Richtung des exakten Bragg-Reflexes. Diese Beziehung wurde erstmals von Mac Gillavry [37] für den absorptionsfreien und nichtrelativistischen Zweistrahlfall abgeleitet. Sie ermöglichte es Kossel und Möllenstedt [35,36], allein durch eine Messung der geometrischen Lage der Intensitätsminima im Beugungsbild, sowohl die Kristalldicke D als auch das Strukturpotential V_g eines angeregten Beugungsreflexes zu bestimmen. Die Zuordnung der Laufzahl p zu den Intensitätsminima ist mit dem Problem verknüpft, daß in den Beugungsdiagrammen nur die Minima auftreten, für die $p > D/\xi_g$ gilt. Sie gelingt aber, wenn man nach einem Vorschlag von Kossel und Möllenstedt, $(\varepsilon_p)^2$ über p^2 aufträgt, und die Zuordnung so lange variiert, bis alle $(\varepsilon_p)^2$ auf einer Geraden liegen. Aus dem Abszissenabschnitt eines solchen Diagrammes kann dann das Strukturpotential V_g und aus dem Ordinatenabschnitt die Kristalldicke D berechnet werden.

Während die anomalen Absorptionserscheinungen sich im Beugungsreflex außer durch eine Kontrastminderung in den Nebenstreifen kaum bemerkbar machen, führen sie im Nullstrahl zu einer deutlichen Unsymmetrie der Intensitätsverteilung. Eine Bestimmung des Absorptionspotentiales V_g' aus Beugungsaufnahmen im konvergenten Bündel ist in der Weise möglich, daß man in den nach Gleichung (4.39) berechneten Verläufen der Intensität im Primärbündel den Wert von V_g' so lange variiert, bis sich eine Übereinstimmung mit dem experimentellen Ergebnis zeigt (siehe z. B. Meyer-Ehmsen [44] oder Gaukler und Graff [43]). Eine Darstellung der Intensitäten im Nullstrahl und im Reflex als Funktion des Einschußwinkels bezeichnet man als "rocking curve".

Im Übergangsbereich zu hohen Elektronenenergien verliert die Zweistrahlnäherung an Gültigkeit. Wenn nur schwache Nebenreflexe auftreten, genügt es nach Meyer-Ehmsen, die Bethe-Korrektur anzuwenden. Dazu sollen die Beugungsaufnahmen nach der oben für die Zweistrahlnäherung angegebenen Methode ausgewertet werden. Aus den so ermittelten Betheschen Strukturpotentialen U_g^B erhält man durch Berechnung der Korrekturterme der Gleichung (4.42) das gesuchte Strukturpotential U_g. Wie die im Kapitel V beschriebenen Untersuchungen aber zeigen, ist dieses Verfahren nur bei geringen Korrekturen anwendbar. Bei sehr hohen Beschleunigungsspannungen hat man meistens einen Vielstrahlfall der systematischen Reihe vorliegen (siehe Abb. 25). Statt nur zweier erhält man dann durch Beugung im konvergenten Bündel mehrere in einer Reihe liegende Intensitätsscheiben (siehe b in Abb. 25). Zur Berechnung der rocking curve ist in diesen Fällen eine Vielstrahlrechnung der systematischen Reihe erforderlich. Dazu muß für viele, eng benachbarte Einschußrichtungen eines der oben genannten Eigenwertprobleme (4.24 oder 4.34) mittels eines Computers gelöst werden.

Manchmal ist es aus experimentellen Gründen wünschenswert, mit einem großen Öffnungswinkel des konvergenten Bündels zu arbeiten, so daß sich die einzelnen Intensitätsscheiben überlappen. Wegen der Inkohärenz der dabei zur Superposition kommenden Partialwellen (siehe Teil B des Anhanges) ergibt sich die Gesamtintensität im Überlappungsbereich als Summe der Intensitäten der Beiträge der einzelnen Scheiben. Beim Vielstrahlfall der systematischen Reihe, und dann auch bei der Zweistrahlnäherung, ist eine eindimensionale Darstellung der Intensität als Funktion der Einschußrichtung ausreichend, da man in der Richtung senkrecht zu g keine Modulation der Intensität hat. Der Aufwand zur Auswertung von Beugungsdiagrammen im konvergenten Bündel wird beim Vorliegen eines Vielstrahlfalles sehr hoch, da man einen Vergleich einer Vielzahl von berechneten rocking curves mit dem Experiment durchführen muß.

IV.7 Zur Messung und Berechnung von Fourierkoeffizienten des komplexen Kristallpotentiales

Elektronenbeugungsexperimente gestatten es, in Verbindung mit der dynamischen Theorie, Fourierkoeffizienten V_g und V'_g des komplexen Kristallpotentiales $V(\vec{r})+iV'(\vec{r})$ zu bestimmen. Daraus kann eine Aussage abgeleitet werden über die Ladungsverteilung $\rho(\vec{r})$ im Kristall. Von besonderem Interesse ist dabei die durch die chemischen Bindungen hervorgerufene Abweichung der Elektronenladungsdichte $\rho_-(\vec{r})$ der Kristallatome von derjenigen freier Atome. Für die Letzteren ist $\rho_-(\vec{r})$ zum Beispiel in Form von Hartree-Fock Eigenfunktionen sehr genau bekannt. Die Auswertung der Beugungsaufnahmen ist besonders einfach im Falle der Zweistrahlnäherung. Schwache Nebenreflexe können berücksichtigt werden, wenn man die gewonnenen Ergebnisse durch Abschätzen der Betheschen Zusatzpotentiale korrigiert. Dabei werden allerdings die Strukturpotentiale und Absorptionspotentiale der Nebenreflexe als bekannt vorausgesetzt. Bei einer Auswertung durch Vielstrahlrechnungen müssen alle zu bestimmenden Struktur- und Absorptionspotentiale und die Kristalldicke so lange variiert werden, bis sich eine Übereinstimmung der numerischen Rechnungen mit dem Experiment ergibt. Bei einer großen Zahl von zu berücksichtigenden Beugungsreflexen führt dies zu einem sehr hohen Rechenaufwand.

Eine wesentliche Vereinfachung der Situation ergibt sich daraus, daß die Elektronenhülle der Atome durch die Bindung in Kristall nur in ihren äußersten Bereichen merklich beeinflußt werden. Dies hat zur Folge, daß nur diejenigen schnellen Elektronen, die die Atomkerne in großem Abstand passieren und damit nur um kleine Winkel gestreut werden, von der veränderten Ladungsverteilung betroffen sind. In große Winkel streuen die Kristallatome dagegen wie freie Atome. Für die Auswertung von Elektronenbeugungsaufnahmen ergibt sich die Konsequenz, daß die Strukturpotentiale V_g der höheren Beugungsordnungen, wie weiter unten dargestellt, aus dem Streuverhalten für Elektronen der freien Atome berechnet werden können und lediglich diejenigen der niedersten Ordnungen aus Experimenten zu bestimmen sind.

Eine direkte Berechnung des Absorptionspotentiales, und damit auch seiner Fourierkoeffizienten V'_g, aus einer Theorie der inelastischen Streuung ist nur näherungsweise möglich. Sie wurde zum Beispiel von Humphreys und Hirsch [28] und von Radi [29], unter Berücksichtigung der in Abschnitt IV.3 genannten inelastischen Prozesse, durchgeführt.

Die am häufigsten angewendete Methode zur Bestimmung von Kristallstrukturdaten ist die Röntgenstrahl-Beugung. Erst in neuerer Zeit ist es mittels des Critical-Voltage Effektes gelungen, auch aus Elektronenbeugungs-Experimenten Ergebnisse mit vergleichbarer Genauigkeit zu erzielen (siehe Goodman [33]). Eine Umrechnung der Röntgen- in Elektronen-Beugungsdaten, und umgekehrt, erscheint deswegen wünschenswert und wird auch häufig durchgeführt. Dabei ist es hilfreich, daß beide Beugungsverfahren durch sehr ähnliche Theorien beschrieben werden.

Ein freies Atom streut Röntgenquanten durch seine Hüllenelektronen, deren Ladungsdichte durch $\rho_-(\vec{r})$ beschrieben wird. Die Wechselwirkung mit dem schweren Kern ist sehr gering und kann deshalb hier vernachlässigt werden. Elektronen dagegen werden durch das gesamte Coulomb - Potential $V(\vec{r})$ gestreut. Der Zusammenhang zwischen der Röntgen- und der Elektronenstreuung ergibt sich daraus, daß das Potential $V(\vec{r})$ mit der Elektronenladungsdichte $\rho_-(\vec{r})$ über die Poisson - Gleichung

$$\nabla^2 V(\vec{r}) = -\frac{e}{\varepsilon_o} \cdot (\rho_+(\vec{r}) - \rho_-(\vec{r})) \qquad (4.47)$$

verknüpft ist. $\rho_+(\vec{r})$ ist die Ladungsdichte der positiven Ladungen. Sie kann als punktförmig in den Atomkernen lokalisiert angenommen werden. $\rho_-(\vec{r})$ und $\rho_+(\vec{r})$ sind bei einer Kernladungszahl Z so normiert, daß mit dem Atomvolumen V_{at} gilt:

$$\int_{V_{at}} \rho_+(\vec{r})\, d^3r = \int_{V_{at}} \rho_-(\vec{r})\, d^3r = Z \qquad (4.48)$$

Das Streuvermögen eines Atomes für Elektronen und für Röntgenstrahlen, kann durch die Atomstreuamplituden $f^{el}(\vec{s})$ und $f^{x}(\vec{s})$ beschrieben werden. $\vec{s}$ ist dabei der Streuvektor mit $\vec{s} = \vec{k}' - \vec{k}$. Unter der Voraussetzung schwacher Streuung, was für Elektronen

mit Energien von über 100 keV und insbesondere für Röntgenstrahlen sehr gut erfüllt ist, kann man die Atomstreuamplituden $f^{el}(\vec{s})$ und $f^{x}(\vec{s})$ aus der ersten Bornschen Näherung bestimmen. Sie ergeben sich dann, bis auf konstante Faktoren, als Fouriertransformierte des Potentiales $V(\vec{r})$ bzw. der Elektronendichte $\rho_{-}(\vec{r})$:

$$f^{el}(\vec{s}) = \frac{2\pi me}{h^2} \int_{V_{at}} V(\vec{r}) \cdot \exp[i(\vec{s}\cdot\vec{r})]\, d^3r \qquad (4.49)$$

$$f^{x}(\vec{s}) = \frac{e.P}{m\ c^2} \int_{V_{at}} \rho_{-}(\vec{r}) \cdot \exp[i(\vec{s}\cdot\vec{r})] d^3r \qquad (4.50)$$

mit dem Polarisationsfaktor $P = (1+\cos^2\theta)/2$, wobei $|\vec{s}| = 4\pi\cdot\sin(\theta)/\lambda$ ist. Die Fouriertransformierte der Elektronenladungsdichte ist definitionsgemäß der Atomformfaktor. Er ist mit der Streuamplitude für Röntgenstrahlen identisch, wenn man diese, wie allgemein üblich, in Einheiten des Streuvermögens eines einzelnen Elektrons $e\cdot P/(m_o c^2)$ darstellt. Mit dieser Konvention ergibt sich als Zusammenhang zwischen den beiden Streuamplituden $f^{el}(\vec{s})$ und $f^{x}(\vec{s})$ die Mottsche Streuformel (prakt. Maßsystem):

$$f^{el}(\vec{s}) = \frac{2m}{\hbar^2} \cdot \frac{e^2}{4\pi\varepsilon_o} \cdot \frac{1}{|\vec{s}|^2} \cdot \{Z - f^{x}(\vec{s})\} \qquad (4.51)$$

Die Streuung von Elektronen und Röntgenstrahlen durch die Gesamtheit der Atome einer Elementarzelle in die Richtung des Beugungsreflexes g wird beschrieben durch die Strukturamplituden $F^{el}(\vec{g})$ und $F^{x}(\vec{g})$. Diese werden manchmal auch als Strukturfaktoren bezeichnet. Sie lassen sich aus den Atomstreuamplituden berechnen gemäß

$$\begin{aligned} F^{el}(\vec{g}) &= \sum_i f_i{}^{el}(\vec{g}) \cdot \exp(-i\vec{g}\cdot\vec{r}_i) \\ F^{x}(\vec{g}) &= \sum_i f_i{}^{x}(\vec{g}) \cdot \exp(-i\vec{g}\cdot\vec{r}_i) \end{aligned} \qquad (4.52)$$

Summiert wird über die n Atome der Elementarzelle. $f_i^{el}(\vec{g})$ und $f_i^{x}(\vec{g})$ sind die Atomstreuamplituden des i-ten Atomes in der Elementarzelle. $\vec{r}_i$ ist dessen relativer Ortsvektor. Die Strukturamplituden sind abhängig von der Wahl des Koordinatenursprunges der Ladungsdichte und des Kristallpotentiales. Für zentrosymmetrische Kristalle ergeben sich reelle Werte, wenn man den Ursprung in ein Symmetriezentrum legt. Für aus nur einer Atomart bestehende Kristallgitter kann man schreiben

$$F_g^{el} = f_g^{el} \cdot Q_g \,, \qquad F_g^{x} = f_g^{x} \cdot Q_g \tag{4.53}$$

mit

$$Q_g = \sum_i \exp(i\vec{g}\cdot\vec{r}_i) \tag{4.54}$$

Q_g bezeichnet man als geometrischen Strukturfaktor.

Die Kristallatome befinden sich nicht in Ruhe, sondern sie vollführen unkorrelierte, von der Temperatur abhängige Schwingungsbewegungen um ihre Ruhelagen $\vec{r}_i$. Dadurch ergibt sich eine Minderung der Strukturamplituden, die durch den Debye - Waller Faktor $M_g(T)$ beschrieben werden kann. Sind $F_g^{el}(0)$ und $F_g^{x}(0)$ die Strukturamplituden bei ruhenden Kristallatomen, was näherungsweise bei 0^{o} K der Fall ist, dann ergibt sich für die Strukturamplituden $F_g^{el}(T)$ und $F_g^{x}(T)$ bei der Temperatur T:

$$F_g^{el}(T) = F_g^{el}(0)\cdot\exp(-M_g(T))$$

$$\text{und} \qquad F_g^{x}(T) = F_g^{x}(0)\cdot\exp(-M_g(T)) \tag{4.55}$$

Der Debye - Waller Faktor ist außer von der Temperatur noch von der Atomart und vom jeweils betrachteten Beugungsreflex abhängig. Es gilt:

$$M_g(T) = B_g(T) \cdot (|\vec{g}|/4\pi)^2 \qquad (4.56)$$

mit $$B_g = 8\pi^2 \cdot \langle u_g^2(T) \rangle$$

Die Größe B_g bezeichnet man als den Temperaturfaktor eines Atoms. $\langle u_g^2(T) \rangle$ ist das für den Reflex g relevante mittlere Verrückungsquadrat. Oft kann B als isotrop, also unabhängig von g betrachtet werden.

Die Strukturpotentiale V_g sind mit den Strukturamplituden F_g^{el} über die Poisson-Gleichung und eine Fouriertransformation verknüpft durch

$$V_g = \frac{h^2}{2\pi m e \cdot V_{zell}} \cdot F_g^{el} \qquad (4.57)$$

(siehe z. B. Kasper [16]), und sind damit ebenfalls temperaturabhängig. V_{zell} ist das Volumen der Elementarzelle. Mit den Gleichungen (4.51) und (4.52) ergibt sich aus (4.57) für das Strukturpotential $V_g(T)$ eines aus nur einer Atomart bestehenden Kristalls bei der Temperatur T:

$$V_g(T) = \frac{e}{\varepsilon_o \cdot V_{zell}} \cdot \frac{1}{|\vec{g}|^2} \cdot \left\{ Z \cdot Q_g - F_g^x(0) \right\} \cdot \exp(-M_g(T)) \qquad (4.58)$$

Dies kann bei Vorliegen einer kubischen Elementarzelle mit der Gitterkonstante a auch noch folgendermaßen geschrieben werden:

$$V_{hkl} = \frac{e}{4\pi^2 \varepsilon_o \cdot a} \cdot \frac{1}{(h^2+k^2+l^2)} \cdot \left\{ Z \cdot Q_{hkl} - F_{hkl}^x(0) \right\} \cdot \exp(-M_g(T)) \qquad (4.59)$$

V.

ELEKTRONENBEUGUNGSEXPERIMENTE IM ÜBERGANGSBEREICH ZWISCHEN ZWEI- UND MEHRSTRAHLFALL

V.1 Beugung im konvergenten Bündel an Muskovit

In den ersten Experimenten wurde das Verhalten der Beugungserscheinungen im konvergenten Bündel an Muskovit-Einkristallen beim Übergang zu höchsten Beschleunigungsspannungen beobachtet. Dieses Material eignet sich für solche Untersuchungen besonders gut, da es sich in planparallele, einkristalline Scheiben bis zu Dicken von unter 100 nm spalten läßt. Kossel und Möllenstedt [35] gelang es, bei Beschleunigungsspannungen von 45 kV an Muskovit-Einkristallen die ersten Beugungsdiagramme im konvergenten Bündel aufzuzeichnen. Aus diesen konnte dann Mac Gillavry [37] das Strukturpotential für den 331-Reflex mit $V_{331} = 2,4$ Volt ermitteln, das genau mit dem von ihr aus Röntgenstrukturfaktoren berechneten Wert übereinstimmte.

1978 berichtete Wurster [45] über Beugung an Muskovit mit 300 keV - Elektronen. Er erreichte eine durchstrahlbare Kristalldicke von 450 nm und wertete die Diagramme unter der Annahme des absorptionsfreien Zweistrahlfalles aus, nachdem er die notwendigen relativistischen Korrekturen in die von Mac Gillavry abgeleitete Beziehung (siehe Gleichung 4.46) eingeführt hatte. Für das Strukturpotential V_{331} gibt er als mittleren Wert $V_{331} = 2,44$ Volt an und stellt, auch bei einer Steigerung der Elektronenenergie auf 300 keV, im Rahmen der Meßgenauigkeit keine Abweichung von den von Kossel und Möllenstedt gemessenen Werten fest.

Möllenstedt selber berichtete schon im Jahr 1946 [46] über Beugung im konvergenten Bündel bei Beschleunigungsspannungen bis 600 kV. Quantitative Ergebnisse dieser Messungen teilt er nicht

mit. Interessant ist, daß man damals, und noch bis zum Anfang der sechziger Jahre (siehe z. B. auch Uyeda [47]), im Gegensatz zu den heutigen Erkenntnissen der Meinung war, die dynamischen Wechselwirkungen würden mit steigenden Beschleunigungsspannungen abnehmen. Dadurch hätte man zur Beschreibung der Experimente von der dynamischen Theorie auf die wesentlich einfachere kinematische Theorie zurückgehen können. Die für die Beugungstheorie erforderlichen relativistischen Korrekturen wurden erst 1961 von Fujiwara [48] angegeben.

Mit der neuen 1,2 MV - Beugungsanlage konnten nun die Experimente zur Beugung im konvergenten Bündel an Muskovit auf Beschleunigungsspannungen bis über 1100 kV ausgedehnt werden. Die Einkristalle wurden persönlich von Herrn Professor Möllenstedt präpariert. Eine Beschreibung des Kristallaufbaues von Muskovit kann der Arbeit von Wurster [45] entnommen werden. Der Netzebenenabstand der Scharen $(\bar{3}\bar{3}1)$ und $(3\bar{3}\bar{1})$ beträgt 1,497 Å.

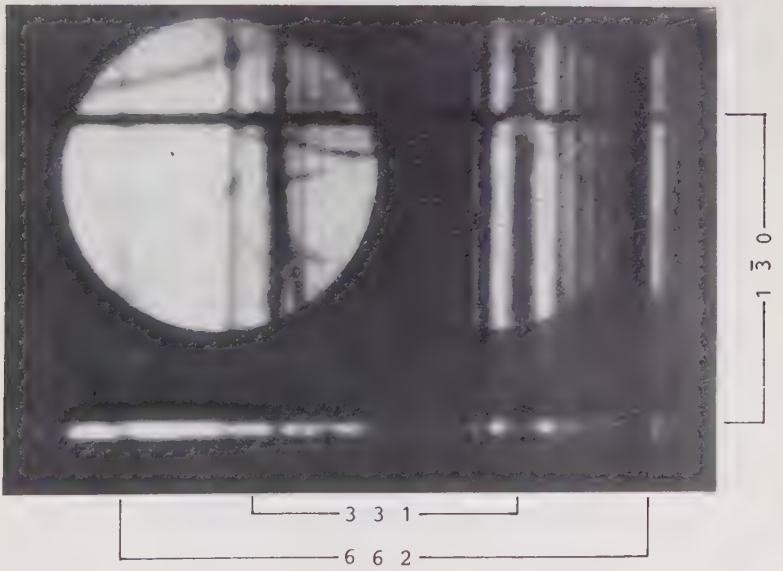


Abb. 26: Beugung im konvergenten Bündel an einem 450 nm dicken Muskovit-Einkristall bei einer Beschleunigungsspannung von 1,11 MV.

In den Abb. 26 und 27 sind Elektronenbeugungsdiagramme im konvergenten Bündel am 331-Reflex von Muskovit für Kristalldicken zwischen 83 nm und 850 nm und für Beschleunigungsspannungen bis 1,11 MV dargestellt. Es zeigte sich, daß die beobachteten Intensitätsverläufe auch bei den höchsten Spannungen nicht merklich von einer Beschreibung durch die Zweistrahlnäherung der dynamischen Theorie (siehe Gl. (4.39)) abweichen. Die Auswertung der Aufnahmen, bei der das Strukturpotential für den 331-Reflex sowie die Kristalldicke bestimmt wurde, war deswegen auf der Grundlage der Gleichung (4.46) möglich. Hierfür war lediglich die Bestimmung der geometrischen Lage der den Bragg-Reflex begleitenden Intensitätsminima erforderlich. Mit steigender Beschleunigungsspannung wurde bei einer Genauigkeit des Verfahrens von zwei bis drei Prozent keine signifikante Änderung des Meßwertes für das Strukturpotential V_{331} festgestellt. Aus einer größeren Zahl von Beugungsdiagrammen im Energiebereich zwischen 700 keV und 1,1 MeV ergibt sich für das Strukturpotential des 331-Reflexes bei Zimmertemperatur:

$$\left|V_{331}(293\ \mathrm{K})\right| = 2{,}45 \pm 0{,}07\ \mathrm{Volt}.$$

Ein Vergleich mit den von Kossel und Möllenstedt und von Wurster ermittelten Werten ergibt eine gute Übereinstimmung. Insgesamt kann festgestellt werden, daß sich für die Beugung am 331-Reflex von Muskovit bei Spannungen bis 1,1 MV weder eine wesentlich Zunahme noch eine Abnahme der dynamischen Wechselwirkungen beobachten läßt . Eine weitere Diskussion dieses Ergebnisses folgt im Zusammenhang mit Vielstrahlauswertungen von Beugungsdiagrammen an Siliziumeinkristallen im Abschnitt V.6.

Die in der vorliegenden Arbeit abgebildeten Vergrößerungen von Beugungsdiagrammen wurden mit Hilfe eines elektronischen Kontrastausgleichers der Fa. Log-E-tronics hergestellt.

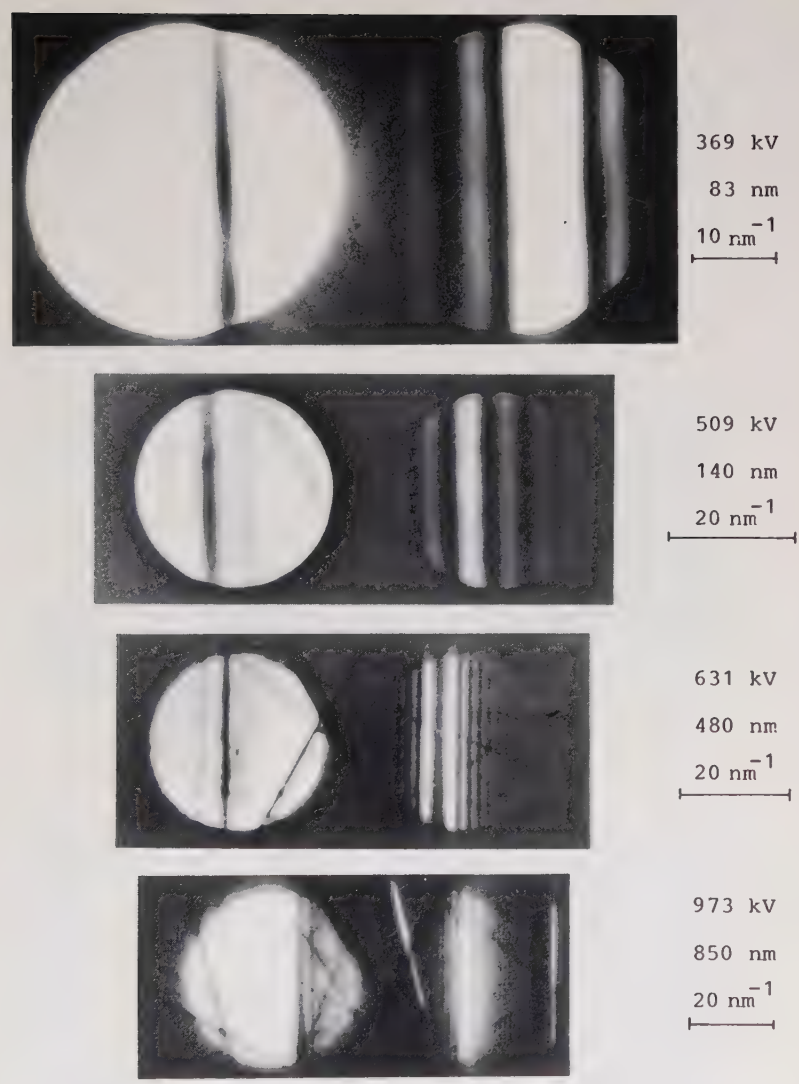


Abb. 27: Beugung im konvergenten Bündel am 331-Reflex von Muskovit. Die Beugungslängen und die Vergrößerungen sind für die vier Aufnahmen gleich. Die Breite der den Bragg-Reflex begleitenden, äußeren Nebenstreifen ist dann näherungsweise umgekehrt proportional zur Kristalldicke. Der Blendendurchmesser wurde den jeweiligen Erfordernissen angepasst.

V.2 Beugung an den (400)-Netzebenen von Silizium

Für weitere Untersuchungen stellte freundlicherweise Herr Dr. Greschner von der Fa. IBM Deutschland hochwertige Silizium-Einkristalle zur Verfügung, an denen die bei hohen Beschleunigungsspannungen auftretenden Beugungseffekte genau studiert werden konnten. Die Kristalle sind (100)-orientiert und enthalten 2 x 2 mm^2 große, freitragende Bereiche einheitlicher Dicken zwischen 300 nm und 1600 nm. In den nachfolgenden Abschnitten des Kapitels V wird über Beugungsexperimente an den (400)- und an den (220)-Netzebenen dieser Silizium-Einkristalle berichtet. Dabei ergibt sich eine Aussage über die Gültigkeit der Zweistrahlnäherung durch den Vergleich von Auswertungen der Beugungsdiagramme auf der Grundlage des Zweistrahlfalles mit Auswertungen anhand von numerischen Vielstrahlrechnungen. Im Kapitel VI wird schließlich über Untersuchungen zum Critical-Voltage Effekt an den (111)-Netzebenen von Silizium berichtet.

In der Abb. 28 sind zwei Beugungsaufnahmen im konvergenten Bündel am 400-Reflex von Silizium wiedergegeben. Es zeigt sich sehr schön die Variation der Intensität in der Richtung des Bragg-Reflexes, die sich aus der unterschiedlichen Kristalldicke und der unterschiedlichen Beschleunigungsspannung ergibt. Der Öffnungswinkel des Primärbündels wurde besonders groß gewählt, um eine sorgfältige Justierung des Elektronenstrahles in einem homogenen Einkristallbereich erkennen zu können. In dem unteren Diagramm der Abb. 28 liegt dadurch auch noch die Einschußrichtung für die zweite Beugungsordnung innerhalb des Primärbündels. Da der 400- und der 800-Reflex von verschiedenen, zueinander inkohärenten Partialwellen angeregt sind, darf dieses nicht mit dem Vorliegen eines Vielstrahlfalles verwechselt werden. Dieser zeichnet sich dagegen dadurch aus, daß für nur eine Einschußrichtung mehrere Beugungsreflexe auftreten. Beim 400-Reflex von Silizium liegen etwa derselbe Netzebenenabstand (d_{400} = 1,3577 Å) und etwa dasselbe Strukturpotential wie beim 331 Reflex von Muskovit vor. Wie dort beobachtet man auch hier, daß der Intensitätsverlauf in der Primär- und in der Reflexscheibe

noch gut durch die Zweistrahlnäherung beschrieben wird. Die Auswertung der Diagramme nach Gleichung (4.46), also unter Annahme des absorptionsfreien Zweistrahlfalles, liefert bei einer Beschleunigungsspannung von 1 MV für das Strukturpotential V_{400} bei Raumtemperatur:

$$\left|V_{400}(293\ K)\right| = 2{,}58 \pm 0{,}06\ \text{Volt}.$$

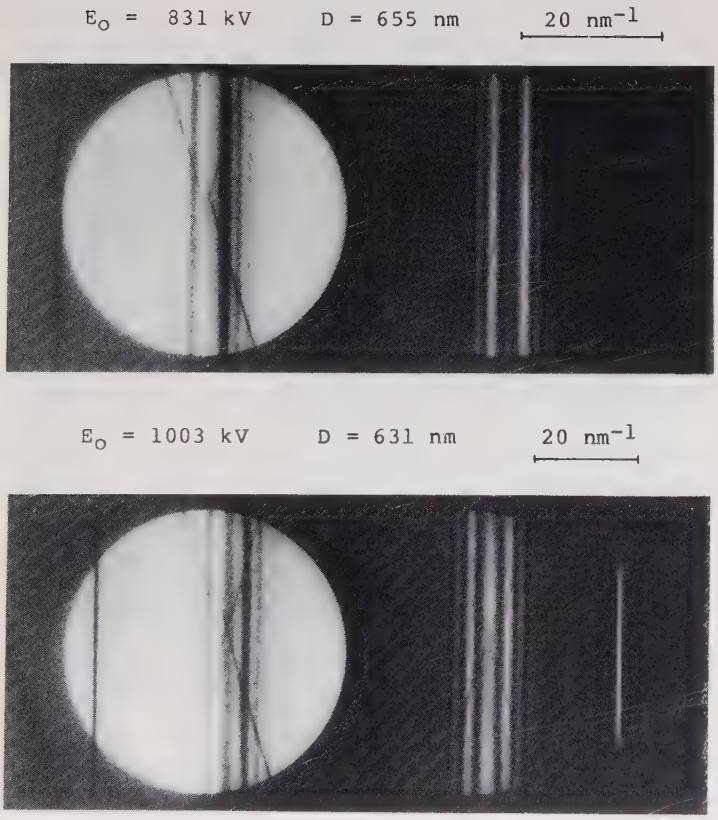


Abb. 28: Beugung im konvergenten Bündel an den (400)-Netzebenen von Silizium-Einkristallen.

V.3 Der Zusammenbruch der Zweistrahlnäherung bei der Beugung an den (220)-Netzebenen von Silizium

Eine Abschätzung für die Beschleunigungsspannungen, ab denen bei exakter Anregung der ersten Beugungsordnung, systematische Mehrstrahleffekte einsetzen, liefern die Gleichungen (4.43) und (4.44). Für die (400)-Netzebenen von Silizium ergibt sich aus der von Metherell [24] abgeleiteten Gleichung (4.44) ein Wert von 7,7 MV und nach Whelan und Humphreys [41] (Gl.(4.43)) ein Wert von über 10 MV. Wesentlich stärkere Mehrstrahleffekte sind zu erwarten, wenn man zur Beugung an den (220)-Netzebenen übergeht. Mit einem Netzebenenabstand d_{220} = 1,9200 Å und einem Strukturpotential $|V_{220}(293\ K)|$ = 4,34 Volt, das sich aus den Atomstreuamplituden freier Atome berechnen läßt (siehe Abschnitt V.3), ergeben sich nach den oben genannten Gleichungen Einsatzspannungen für Mehrstrahleffekte von 1,9 MV und 4,3 MV. Diese Werte beziehen sich aber auf eine annähernd exakte Anregung der ersten Ordnung. Für die Auswertung von Beugungsdiagrammen im konvergenten Bündel durch die Zweistrahlnäherung werden jedoch die geometrischen Lagen von mehreren, außerhalb des Bragg-Reflexes liegenden Intensitätsminima benötigt. Je weiter diese Minima vom Bragg-Reflex entfernt liegen, desto größer ist der ihrer Einfallsrichtung entsprechende Anregungsfehler für die erste Ordnung, und desto kleiner wird der Anregungsfehler für die zweite oder für die minus-erste Beugungsordnung. Dadurch machen sich Mehrstrahleffekte in den äußersten Nebenstreifen am stärksten bemerkbar. Insgesamt kann erwartet werden, daß der Zusammenbruch der Zweistrahlnäherung für die Auswertung von Beugungsdiagrammen in konvergenten Bündel schon wesentlich unterhalb der von Metherell [24] oder von Whelan und Humphreys [41] angegebenen Beschleunigungsspannungen erfolgt.

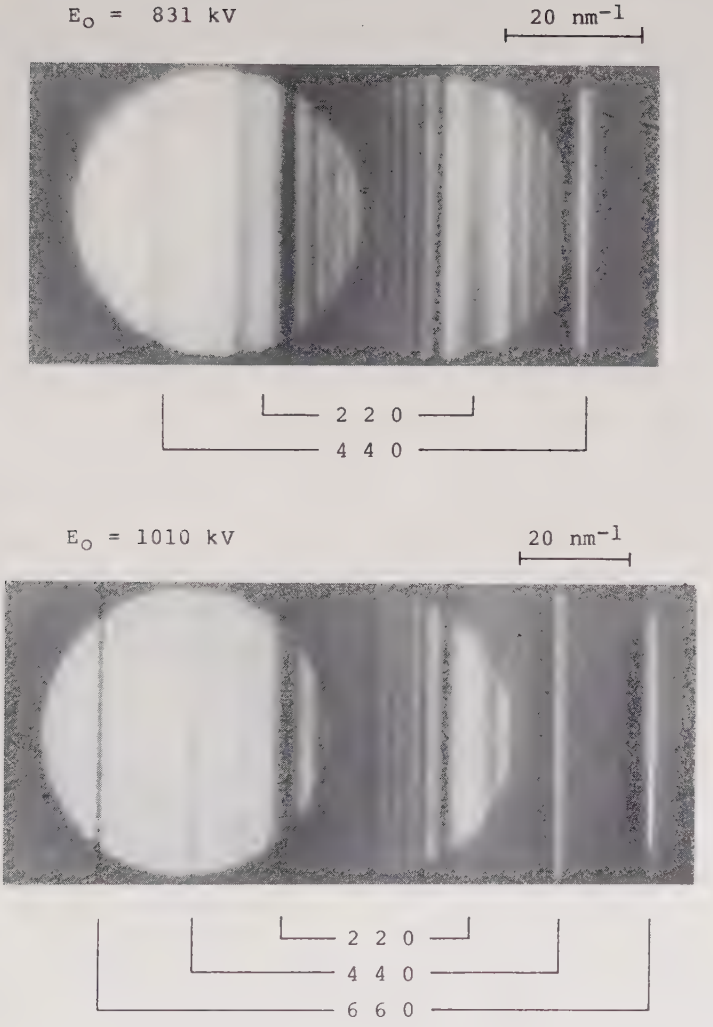


Abb. 29: Beugung im konvergenten Bündel an den (220)-Netzebenen von Silizium. Die Diagramme lassen sich mittels der Zweistrahlnäherung nicht mehr exakt auswerten. Die Kristalldicken liegen zwischen 650 nm und 750 nm.

Die Abb. 29 zeigt zwei Beugungsdiagramme im konvergenten Bündel an den (220)-Netzebenen von Silizium. Wegen des großen Öffnungswinkels des Primärbündels wird in dem unteren Diagramm neben dem 220- und 440- auch noch der 660-Reflex direkt angeregt, was auch hier nicht mit dem Vorhandensein eines Mehrstrahlfalles zu verwechseln ist. Zum Bragg-Reflex der ersten Beugungsordnung treten deutlich sichtbare Nebenstreifen bis zu großen Winkelabständen auf. Im unteren Diagramm der Abb. 29 ist dies bis annähernd an die Einfallsrichtung der dritten Ordnung der Fall. Zu den zweiten und dritten Beugungsordnungen sind nur so schwache Nebenstreifen vorhanden, daß die zugehörigen Reflexscheiben in jeweils nur eine Linie entarten (siehe auch Abb. 28).

Das System der Nebenstreifen ist für die Winkel in der Nähe der Einschußrichtung, die die Bragg-Bedingung für die zweite Beugungsordnung erfüllen, stark gestört. In diesem Bereich wird der Anregungsfehler für die zweite Ordnung so klein, daß der größte Teil der eingestrahlten Intensität in den 440-Reflex gebeugt wird. In dem Übergangsgebiet, in dem die erste und die zweite Ordnung gleichzeitig angeregt werden, liegen starke Mehrstrahl-Wechselwirkungen vor. Diese nehmen zum Bragg-Reflex der ersten Ordnung hin zwar ab, können aber die Intensitätsverteilung noch beeinflussen.

Bei der Auswertung von Beugungsaufnahmen im konvergenten Bündel durch das in Abschnitt IV.6 beschriebene graphische Verfahren werden die geometrischen Lagen von mindestens drei Intensitätsminima des Nebenstreifensystems benötigt. Wegen des störenden Einflusses der beschriebenen Mehrstrahleffekte sollten nur Minima mit einem möglichst geringen Winkelabstand zur Richtung des Bragg-Reflexes der ersten Ordnung zur Verwendung kommen. Diese Bedingung läßt sich aber bei hohen Beschleunigungsspannungen nicht mehr einhalten, da, auch bei großen Kristalldicken, nur noch wenige Nebenstreifen im Winkelbereich zwischen der ersten und der zweiten Beugungsordnung auftreten. Die Extinktionslänge ξ_g der Gleichung (4.38) strebt mit steigenden Beschleunigungsspannungen gegen den Grenzwert $h \cdot c/(2 \cdot e \cdot |V_g|)$ und hat bei 500 kV schon etwa 85 Prozent dieses Wertes erreicht. Beim Übergang zu noch höheren Spannungen ändert sie sich nur noch wenig. Dadurch bleibt die Lage der Intensitätsminima der Gleichung

(4.46) nahezu unverändert, während sich der Winkelabstand zwischen den Beugungsordnungen proportional zu λ, und damit oberhalb von 500 kV etwa proportional zu $1/E_o$, verkleinert. Bei konstanter Kristalldicke und steigender Elektronenenergie wandert damit die Störung des Nebenstreifensystems immer näher an die Bragg-Lage der ersten Ordnung heran.

Obwohl in den Beugungsdiagrammen der Abb. 29 die Kristalldikke mit 650 nm bis 750 nm beträchtlich ist, sind wegen dieses Effektes nur noch 4 Minima vorhanden. Senkt man bei Beugung von 1 MeV-Elektronen an den (220)-Netzebenen von Silizium die Kristalldicke unter 500 nm, dann ist das graphische Auswerteverfahren nicht mehr anwendbar, da weniger als drei Intensitätsminima auftreten. In diesen Fällen können die Diagramme nur noch durch einen Vergleich der beobachteten Intensitäten mit rocking curves ausgewertet werden, die sich nach den Gleichungen (4.37) oder (4.39) aus der Zweistrahlnäherung analytisch leicht berechnen lassen. Diese Methode ist aber, wenn weniger als drei Nebenstreifen vorhanden sind, sehr ungenau, da sich ein gegebener Intensitätsverlauf durch stark unterschiedliche Kombinationen von Kristalldicken und Strukturpotentialen annähern läßt. Für Kristalldicken, die wesentlich oberhalb der in der Abb . 29 angegebenen Werte liegen, sind zwar in der Nähe des Bragg-Reflexes ausreichend viele Nebenminima für eine Zweistrahlauswertung vorhanden, doch zeigt es sich, daß diesen nur noch mit großer Unsicherheit die richtige Laufzahl (siehe Gl. (4.46)) zugeordnet werden kann. Dadurch wird auch in diesem Fall die Angabe des Strukturpotentiales und der Kristalldicke sehr ungenau. Inwieweit die Zweistrahlnäherung noch brauchbare Ergebnisse bei den Beugungsdiagrammen der Abb. 29, also in einem mittleren Dickenbereich, liefert, hängt von der Stärke des Einflusses der Mehrstrahleffekte ab. Diese brauchen sich nicht nur auf Nebenstreifen auszuwirken, die im Winkelbereich der zweiten Beugungsordnung liegen, sondern können auch noch für die exakte Bragg-Orientierung der ersten Ordnung wirksam sein. Wie die Untersuchungen der vorliegenden Arbeit zeigen, kann dieser Effekt, ohne daß sein Einsetzen im Beugungsdiagramm deutlich erkennbar wird, zusammen mit der Auswertung durch die Zweistrahlnäherung zu Fehlern der Ergebnisse von 5 bis 10 Prozent führen. In der unteren

Aufnahme der Abb. 29 überlagert sich Intensität, die in die zweite Ordnung gebeugt wurde, dem Reflex der direkt angeregten dritten Ordnung. Nicht mit Vielstrahleffekten zu verwechseln sind auch die sich aus dem inelastischen Streuuntergrund ergebenden Kikuchi-Linien (siehe z. B. Abb. 28 oben).

Die Zweistrahlauswertung der Beugungsdiagramme der Abb. 29 ergibt für die obere Aufnahme bei 831 kV:

$$\left|V_{220}(293\ \mathrm{K})\right| = 4{,}40\ \mathrm{Volt}, \quad D = 665\ \mathrm{nm}$$

und für die untere Aufnahme bei 1010 kV:

$$\left|V_{220}(293\ \mathrm{k})\right| = 4{,}50\ \mathrm{Volt}, \quad D = 727\ \mathrm{nm}.$$

Werte zwischen 4,40 Volt und 4,55 Volt für den Betrag des Strukturpotentiales V_{220} wurden auch aus einer Reihe weiterer Beugungsdiagramme bei etwa denselben Kristalldicken gemessen. Dabei beobachtet man eine leichte Zunahme des Meßwertes $|V_{220}|$ mit steigender Kristalldicke. Auf eine Angabe von Fehlerschranken wurde hier verzichtet. Eine Aussage über die Genauigkeit dieser durch die Zweistrahlnäherung gewonnenen Ergebnisse läßt sich nur durch einen Vergleich mit den im Abschnitt V.5 beschriebenen Vielstrahlauswertungen machen.

V.4 Berechnung der Strukturpotentiale der höheren Ordnungen von Silizium aus Atomstreuamplituden

Um den Rechenaufwand für eine Vielstrahlauswertung der Elektronenbeugungsaufnahmen zu beschränken, geht man davon aus, daß die Strukturpotentiale V_g der höheren Ordnungen bekannt sind. Diese lassen sich, wie in Abschnitt IV.7 beschrieben, aus den Atomstreuamplituden der freien Siliziumatome ausreichend genau berechnen. Mit den von Humphreys und Hirsch [28] oder auch von Radi [29] für eine Reihe von Materialien angegebenen Verhältnissen V_g'/V_g könnnen dann auch die Absorptionspotentiale V_g' der höheren Beugungsordnungen berechnet werden.

Das Siliziumgitter hat Diamantstruktur und ist somit zentrosymmetrisch. Es läßt sich durch zwei kubisch-flächenzentrierte Gitter, die um ein Viertel der Raumdiagonalen gegeneinander verschoben sind, beschreiben. Der Kristall ist sowohl zu jedem Bindungszentrum, also zu den Mittelpunkten zwischen zwei jeweils am nächsten benachbarten Atomen, als auch zu den Antibindungszentren symmetrisch. Für die Gitterkonstante wird ein Mittelwert der von Haussühl [49] und von Aldred und Hart [50] angegebenen Werte mit $a_o = 5{,}43069$ Å angenommen. Legt man den Koordinatenursprung für das Gitterpotential in ein Bindungszentrum, also zum Beispiel in die Position (1/8, 1/8, 1/8) innerhalb der Elementarzelle, dann erhält man wegen der beschriebenen Symmetrie reelle Strukturfaktoren. Die Koordinaten der 8 Atome der Elementarzelle in Einheiten der Gitterkonstante a_o sind dann:

$$\left(\tfrac{1}{8},\tfrac{1}{8},\tfrac{1}{8}\right),\ \left(\tfrac{5}{8},\tfrac{5}{8},\tfrac{1}{8}\right),\ \left(\tfrac{5}{8},\tfrac{1}{8},\tfrac{5}{8}\right),\ \left(\tfrac{1}{8},\tfrac{5}{8},\tfrac{5}{8}\right)$$

$$\left(-\tfrac{1}{8},-\tfrac{1}{8},-\tfrac{1}{8}\right),\ \left(\tfrac{3}{8},\tfrac{3}{8},-\tfrac{1}{8}\right),\ \left(\tfrac{3}{8},-\tfrac{1}{8},\tfrac{3}{8}\right),\ \left(-\tfrac{1}{8},\tfrac{3}{8},\tfrac{3}{8}\right).$$

Mit der Gleichung (4.54) ergibt sich daraus ein geometrischer Strukturfaktor Q_{hkl}:

$$Q_{hkl} = 2\cos\left[\frac{\pi}{4}(h+k+l)\right]\cdot\Big\{1+\cos[\pi(h+k)]+\cos[\pi(h+l)]+\cos[\pi(k+l)]\Big\}$$

Verschiebt man den Ursprung des Potentiales in ein Antibindungszentrum, also zum Beispiel in die Position (5/8, 5/8, 5/8) innerhalb der Elementarzelle, dann ergibt sich:

$$Q_{hkl} = 2\cos\left[\tfrac{3}{4}\pi(h+k+l)\right] \cdot \left\{1+\cos\left[\pi(h+k)\right]+\cos\left[\pi(h+l)\right]+\cos\left[\pi(k+l)\right]\right\}$$

Bei der Verschiebung wechselt also für einen Teil der Strukturfaktoren das Vorzeichen, während es für einen anderen Teil erhalten bleibt. Im Rahmen dieser Arbeit werden die geometrischen Strukturfaktoren mit dem Potentialursprung in einem Bindungszentrum gewählt.

Mit den von Doyle und Turner [51] aus relativistischen Hartree-Fock Eigenfunktionen gewonnenen Atomstreuamplituden freier Atome können nun nach den Gleichungen (4.53) und (4.54) die Strukturamplituden $F_g^{el}(0)$ und $F_g^{x}(0)$ berechnet werden. 1972 veröffentlichten Aldred und Hart [50] Ergebnisse von Präzisions-Röntgenstrukturuntersuchungen für die wichtigsten Reflexe von Silizium-Einkristallen. Sie geben für den Temperaturfaktor B der Siliziumatome bei 293,2 K an: $B = 0{,}4613 \pm 0{,}0027\ \text{Å}^2$. Daraus ergibt sich nach Gleichung (4.56) der Debye-Waller Faktor. Die Strukturpotentiale von Silizium bei Zimmertemperatur können schließlich nach Gleichung (4.59) gewonnen werden. In der Tabelle 5.1 sind die wichtigsten für die Vielstrahlrechnungen verwendeten Strukturpotentiale höherer Ordnungen von Silizium dargestellt.

Zur Berechnung der Absorptionspotentiale der höheren Ordnungen wurden den Arbeiten von Humphreys und Hirsch [28] und von Radi [29] die Verhältnisse V'_g/V_g entnommen. Die angegebenen Werte weichen, vor allem für nieder indizierte Beugungsreflexe, voneinander ab. In der Tabelle 5.2 sind die sich mit den Strukturpotentialen der Tabelle 5.1 ergebenden Absorptionspotentiale einander gegenüber gestellt. Ebenfalls aufgelistet sind dort die in den Vielstrahlrechnungen verwendeten Werte.

Für das mittlere innere Potential wurde der von Radi angegebene Wert $V_{ooo} = 11{,}5$ Volt eingesetzt, und für das mittlere Absorptionspotential wurde ein von Voss, Lehmpfuhl und Smith [52] gemessener Wert von $V'_{ooo} = 0{,}61$ Volt angenommen.

Tabelle 5.1

Strukturpotentiale von Silizium bei Zimmertemperatur, berechnet aus den Atomstreuamplituden nach Doyle und Turner [51]. Der Potentialursprung ist in einem Bindungszentrum liegend gewählt. Für die in Klammern stehenden Strukturpotentiale werden in den Abschnitten V.5 und VI.5 experimentelle Ergebnisse mitgeteilt. (Angaben in Volt)

Reflex	V_{hkl}	Reflex	V_{hkl}	Reflex	V_{hkl}
0 0 0	11,5	--	--	--	--
1 1 1	(-5,432)	2 2 0	(-4,337)	4 0 0	(-2,565)
2 2 2	(0,0)	4 4 0	1,479	8 0 0	0,812
3 3 3	1,194	6 6 0	-0,719	12 0 0	-0,307
4 4 4	-1,064	8 8 0	0,360	16 0 0	0,124
5 5 5	0,486	1010 0	-0,190	20 0 0	-0,044
6 6 6	0,0	1212 0	0,098	--	--
7 7 7	-0,211	--	--	--	--
8 8 8	0,202	--	--	--	--
9 9 9	-0,096	--	--	--	--

Tabelle 5.2

Absorptionspotentiale von Silizium-Einkristallen bei Zimmertemperatur für 100 keV-Elektronen. Die Umrechnung auf andere Elektronenenergien erfolgt nach Gl. (4.30). Für die in Klammern stehenden Werte werden in den Abschnitten V.5, VI.5 und VI.6 experimentelle Ergebnisse mitgeteilt. (Angaben in Volt).

Reflex	Absorptions-potentiale nach Humphreys und Hirsch [28]	Absorptions-potentiale nach Radi [29]	verwendete Absorptions-potentiale
0 0 0	0,23	0,70	0,61
1 1 1	-0,07	-0,10	(--)
2 2 2	0	0	(--)
3 3 3	0,05	0,05	0,05
4 4 4	-0,06	-0,06	-0,06
5 5 5	0,03	0,04	0,04
6 6 6	0	0	0
2 2 0	-0,09	-0,11	(--)
4 4 0	0,07	0,08	0,08
6 6 0	-0,05	-0,06	-0,06
8 8 0	0,03	0,03	0,03
4 0 0	-0,08	-0,09	(--)
8 0 0	0,05	0,04	0,04
12 0 0	-0,02	-0,02	-0,02

V.5 Auswertung von Beugungsdiagrammen im konvergenten Bündel durch numerische Vielstrahlrechnungen

Für die numerische Lösung von Vielstrahlproblemen wurde ein Computerprogramm entwickelt. Die an den Kristallen auftretende anomale Absorption wird dabei nicht nur durch eine Störungsrechnung (siehe Gl. (4.33)), sondern durch die Berechnung komplexer Eigenwerte für die die Absorptionspotentiale enthaltende komplexe Matrix $\mathbf{G}$ der Gleichungen (4.34) und (4.35) berücksichtigt. Dies ist erforderlich, um bei den im Kapitel VI beschriebenen Vielstrahlrechnungen zum Critical-Voltage Effekt die erforderliche Genauigkeit zu erreichen. Eine Diskussion des Rechenverfahrens, der verwendeten Bibliotheksprogramme und der Genauigkeitskontrolle erfolgt im Teil A des Anhangs. Mit Hilfe des erstellten Programmes gelang es, die aufgezeichneten Beugungsdiagramme exakt auszuwerten. Durch einen Vergleich mit den in den Abschnitten V.1 bis V.3 ermittelten Werten, konnte eine Aussage über die Gültigkeit der Zweistrahlnäherung für den Spezialfall der Beugung im konvergenten Bündel abgeleitet werden. Zusätzlich wurde es möglich, die Anwendbarkeit der Bethe-Korrektur beim Übergang zu hohen Beschleunigungsspannungen zu überprüfen.

Zur Auswertung der Beugungsdiagramme im konvergenten Bündel wurden anhand von Vielstrahlrechnungen ermittelte rocking curves mit den beobachteten Intensitätsverläufen verglichen. Die Rechnungen beschränkten sich auf die Berücksichtigung der systematischen Nebenreflexe, was in Übereinstimmung mit den Experimenten eine zulässige Näherung darstellt (siehe Abschnitt IV.6, V.2 und V.3). Bei großen Öffnungswinkeln des Primärbündels überlagern sich die Beugungscheiben (siehe z.B. Abb. 31). In diesen Fällen müssen die Intensitäten additiv überlagert werden (siehe auch Abschnitt IV.6).

Bei den Vielstrahlrechnungen für die Beugungsaufnahmen an den (400)- und an den (220)-Netzebenen von Silizium wurden die Struktur- und Absorptionspotentiale der höheren Ordnungen als bekannt vorausgesetzt. Die verwendeten Werte können den Tabellen

5.1 und 5.2 entnommen werden. Durch die Vielstrahlauswertung bestimmt wurden das Strukturpotential V_g und das Absorptionspotential V_g' der ersten Beugungsordnung sowie die Dicke D der als planparallel angenommenen Kristallbereiche.

In Abhängigkeit von den verwendeten Öffnungswinkeln des konvergenten Bündels mußte zur Berechnung einer rocking curve das Eigenwertproblem für 200 bis 500 Einschußrichtungen gelöst werden. Bei n = 20 berücksichtigten Beugungsreflexen nimmt dies 20 bis 40 Minuten Rechenzeit in Anspruch. Mit einer Erhöhung der Zahl der Reflexe steigt bei dem verwendeten Bibliotheks-Unterprogramm (siehe Anhang A) der Zeitwand proportional zu n^2 bis n^3. Für die Auswertung eines Beugungsdiagrammes müssen die in die Rechnung eingehenden Werte für V_g, V_g' und D solange variiert werden, bis sich eine möglichst gute Übereinstimmung der rocking curve mit den beobachteten Intensitäten ergibt. Dabei ist es zweckmäßig in der nachfolgend beschriebenen Weise vorzugehen.

In der nahen Umgebung der Lage des exakten Bragg-Reflexes beeinflussen die Kristalldicke D und das Strukturpotential V_g den Intensitätsverlauf etwa gleich stark. Dagegen wirken sich in weit außerhalb liegenden Nebenstreifen im wesentlichen nur noch Änderungen der Kristalldicke aus. Deswegen wird zuerst mit einer Näherung für das Strukturpotential, die man z. B. aus den Atomstreuamplituden der freien Atome berechnet, durch Beobachtung dieser Nebenstreifen die Kristalldicke D bestimmt. Anschließend wird durch eine Variation des Strukturpotentiales versucht, auch um den Bragg-Reflex herum eine mit dem Experiment übereinstimmende Intensitätsverteilung zu erreichen. Damit hat man eine verbesserte Näherung für das Strukturpotential. Der gesamte Vorgang wird so oft wiederholt, bis sich keine Änderungen für die zu ermittelnden Werte mehr ergeben.

Das Absorptionpotential V_g' wird über den unsymmetrischen Intensitätsverlauf im Primärbündel bestimmt. Wie die Rechnungen gezeigt haben, ist der Einfluß von Änderungen von V_g' auf die Verteilung in den abgebeugten Reflexscheiben vernachlässigbar gering. Wegen des hohen inelastischen Streuuntergrundes ist die quantitative photometrische Messung der Primärscheibe sehr schwierig. Dadurch kann das Absorptionspotential nur mit einem

relativ großen Fehler angegeben werden. Günstig wirkt sich allerdings hierbei der Übergang zu hohen Beschleunigungsspannungen aus, da einerseits die durchstrahlbaren Dicken etwa proportional zur Elektronenenergie steigen (siehe z. B. Möllenstedt [46]), und andererseits die anomalen Absorptionserscheinungen, wie die Abb. 27 zeigt, erst bei großen Kristalldicken deutlich hervortreten.

Bei den Vielstrahlrechnungen ist es wichtig, die zusätzlich berücksichtigten höheren Beugungsordnungen symmetrisch zu dem direkt angeregten Reflex zu wählen. Ein Abweichen von dieser Bedingung hat zur Folge, daß die berechneten Beugungsreflexe für Richtungen auftreten, die nicht ihrer wirklichen Lage entsprechen. Bei der Beugung im konvergenten Bündel ändert sich allerdings die Symmetrie mit der variierenden Einfallsrichtung der Elektronen. In diesem Fall ist es günstig, eine möglichst große Zahl von Nebenreflexen in den Rechnungen mitzunehmen.

Die Abb. 30 und 31 zeigen Beugungsaufnahmen im konvergenten Bündel an den (400)- und an den (220)-Netzebenen von Silizium. In den zugehörigen rocking curves wurde die Intensität auf den durch die Pfeile bezeichneten Strecken berechnet. Die Markierungen unterhalb der Kurven geben die Lage der Netzebenenspur ('000')und der Bragg-Reflexe der verschiedenen Beugungsordnungen an.

Die Vielstrahlauswertung der Beugungsaufnahme an den (400)-Netzebenen, die in der Abb. 30 dargestellt ist, ergibt folgende Werte:

$$V_{400}(293\ K) = -2{,}54 \pm 0{,}03\ \text{Volt}$$

$$V'_{400}(293\ K) = -0{,}06 \pm 0{,}02\ \text{Volt}$$

$$D = 587{,}5 \pm 1{,}5\ \text{nm}.$$

Die Umrechnung auf eine stationäre Anordnung der Atome im Kristall, bei der also keine Temperaturbewegung vorhanden ist, ergibt:

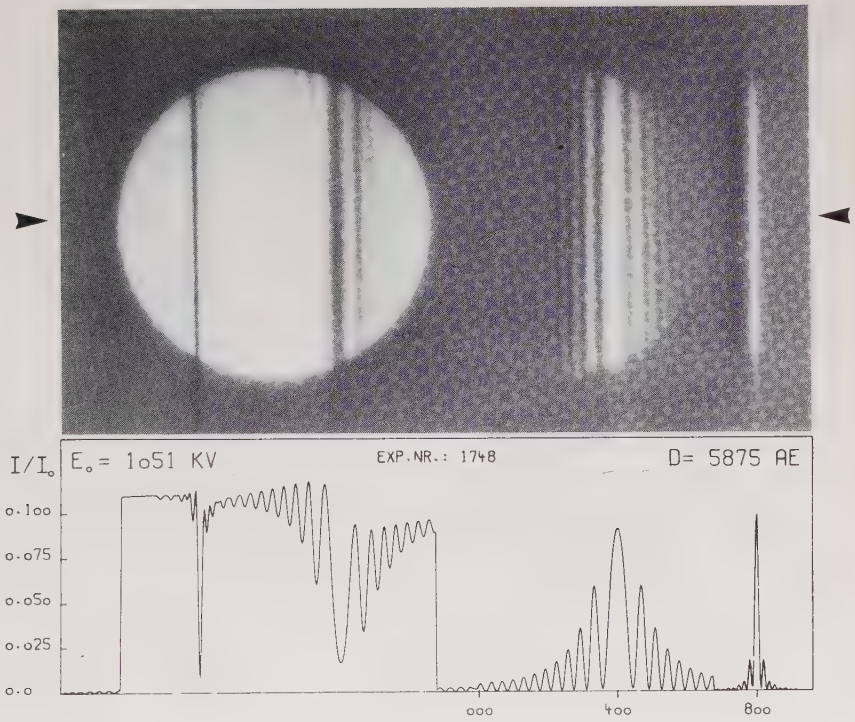


Abb. 30 Beugung im konvergenten Bündel nach Kossel und Möllenstedt an den (400)-Netzebenen von Silizium; Auswertung durch Vergleich des Intensitätsverlaufes auf der durch zwei Pfeile markierten Linie mit rocking curves, die aus numerischen Vielstrahlrechnungen ermittelt wurden.

$$V_{400}(\text{stat.}) = -2{,}70 \pm 0{,}03 \text{ Volt}$$

und die stationäre Röntgenstrukturamplitude

$$F^{x}_{400}(\text{stat.}) = -60{,}81 \pm 0{,}56.$$

Diese Werte wurden auch durch die Auswertung weiterer Beugungsdiagramme bestätigt. Die Röntgenstrukturamplitude kann damit auf genauer als 1 Prozent angegeben werden.

In dem Beugungsdiagramm an den (220)-Netzebenen der Abb. 31 ist wieder deutlich die Störung des Nebenstreifensystems der ersten Beugungsordnung festzustellen. Daß ein merklicher Mehrstrahleffekt auftritt, erkennt man auch an der links neben dem Primärbündel, allerdings nur schwach, sichtbaren Reflexscheibe der minus ersten Ordnung. Für die Auswertung durch Vergleich mit der rocking curve erweist es sich als günstig, einen großen Öffnungswinkel des konvergenten Bündels zu wählen. Durch die für einen großen Winkelbereich geforderte Übereinstimmung des gemessenen und des berechneten Intensitätsverlaufes läßt sich die Kristalldicke und dann auch das Strukturpotential sehr genau festlegen. Wie die Abb. 31 zeigt, werden auch die feinsten Details des Beugungsdiagramms exakt durch die Rechnung wiedergegeben.

Die Auswertung liefert folgende Werte für die Beugung an den (220)-Netzebenen von Silizium-Einkristallen:

$$V_{220}(293 \text{ K}) = -4{,}34 \pm 0{,}04 \text{ Volt}$$

$$V'_{220}(293 \text{ K}) = -0{,}13 \pm 0{,}03 \text{ Volt}$$

$$D = 706{,}0 \pm 1{,}5 \text{ nm} ,$$

und für die stationären Atomanordnungen:

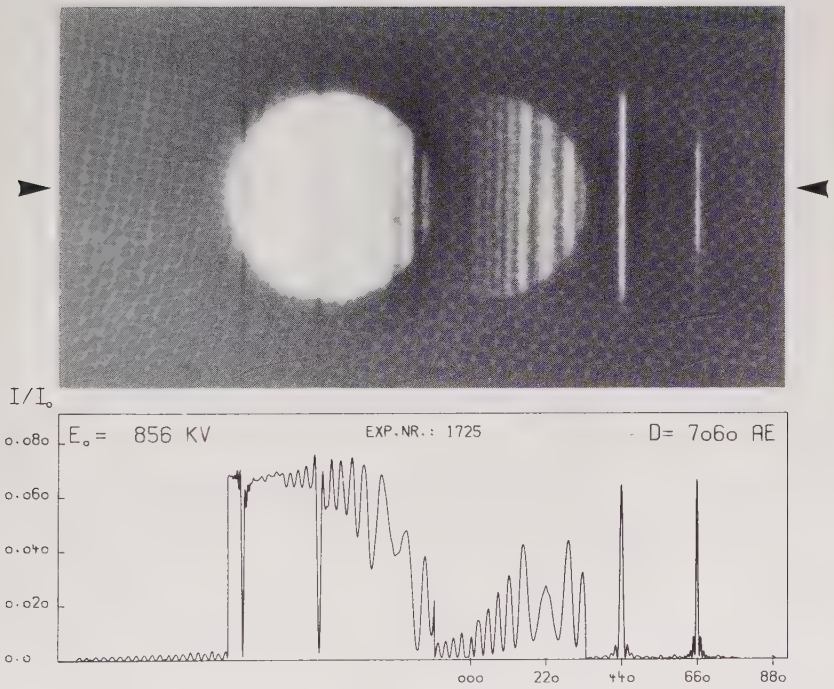


Abb. 31: Beugung im konvergenten Bündel nach Kossel und Möllenstedt an den (220)-Netzebenen von Silizium; Auswertung durch Vergleich des Intensitätsverlaufes auf der durch zwei Pfeile markierten Linie mit rocking curves, die aus numerischen Vielstrahlrechnungen ermittelt wurden.

$$V_{220}(\text{stat.}) = -4{,}48 \pm 0{,}04 \text{ Volt}$$

und $$F^{x}_{220}(\text{stat.}) = -69{,}56 \pm 0{,}38.$$

Die Röntgenstrukturamplituden F^{x}_{400} und F^{x}_{220} sind in Einheiten des Streuvermögens eines Einzelelektrons angegeben.

Tabelle 5.3

Vergleich der gemessenen Struktur- und Absorptionspotentiale mit den Ergebnissen anderer Autoren. Wegen der möglichen verschiedenen Wahl des Potentialursprunges sind jeweils nur die Beträge angegeben. Die Struktur- und Absorptionspotentiale sind für Zimmertemperatur (293 K) in Volt angegeben. Sie sind umgerechnet in Röntgenstrukturamplituden bei stationären Atomanordnungen. Diese sind in Einheiten des Streuvermögens eines Einzelelektrons angegeben. In den ersten drei Zeilen sind theoretisch ermittelte Werte wiedergegeben. Bei den Messungen von Aldred und Hart handelt es sich um Röntgenstrukturuntersuchungen. Die restlichen Werte wurden aus Elektronenbeugungs - Experimenten bestimmt.

Autoren	V_{400}	F^{x}_{400}	V_{220}	F^{x}_{220}	V^{i}_{400}	V^{i}_{220}
Radi [29]	2,55	60,62	4,22	70,67	0,09	0,11
Humphreys und Hirsch [28]	--	--	--	--	0,08	0,09
Doyle und Turner [51]	2,57	60,25	4,34	69,63	--	--
Aldred und Hart [50]	2,62	59,02	4,38	69,21	--	--
Ichimiya und Lehmpfuhl [53]	--	--	--	--	0,04	0,05
Terasaki et al. [54]	--	--	4,34	69,60	--	--
Voss et al. [52]	2,60	59,49	4,40	67,63	0,03	0,04
Meyer-Ehmsen [44]	--	--	--	--	--	0,12
Verfasser	2,54	60,81	4,34	69,56	0,06	0,13

V.6 Vergleich von Zweistrahl- und Vielstrahlauswertungen

Bei der Anwendung der Zweistrahlnäherung werden schwache Nebenreflexe vernachlässigt. Eine Möglichkeit zur Berücksichtigung einsetzender Mehrstrahleffekte ergibt sich durch die Bethe-Korrektur (siehe Abschnitt IV.5). Ob sie sich bei der Auswertung von Beugungsexperimenten im konvergenten Bündel auch beim Übergang zu sehr hohen Beschleunigungsspannungen in der von Meyer-Ehmsen [44] angegebenen einfachen Weise anwenden läßt, ergibt ein Vergleich der durchgeführten Zwei- und Vielstrahlauswertungen. Meyer-Ehmsen ermittelte aus Beugungsdiagrammen im konvergenten Bündel, die mit 75 keV - Elektronen an den (220)-Netzebenen von Silizium registriert wurden, nach Gleichung (4.46) über das System der Nebenstreifen das Strukturpotential V_{220}. Er berichtigte den erhaltenen Wert duch eine Bethe-Korrektur, die für die exakte Bragg-Reflexionsrichtung der ersten Ordnung berechnet wurde. Für den 400-Reflex von Silizium beträgt dieser Korrekturwert -1 Prozent bei einer Beschleunigungsspannung von 300 kV und -2 Prozent bei 1 MV. Dieselben Werte ergeben sich etwa auch für den 331-Reflex von Muskovit. Eine Anwendung auf die im Abscnitt V.1 mitgeteilten Ergebnisse der Messungen an Muskovit liefern dann:

$$\left|V_{331}(293\ \mathrm{K})\right| = 2{,}40\ \text{Volt}.$$

Aus den von Wurster [45] beobachteten Werten erhält man mit der entsprechenden Bethe-Korrektur:

$$\left|V_{331}(293\ \mathrm{K})\right| = 2{,}41\ \text{Volt}.$$

Der Vergleich mit dem von Kossel und Möllenstedt [35] und von Mac Gillavry [37] bestimmten Strukturpotential

$$\left|V_{331}(293\ \mathrm{K})\right| = 2{,}40\ \text{Volt}$$

zeigt, daß die Bethe-Korrektur hier sehr gute Ergebnisse liefert. Bestätigt wird dieses auch durch die Untersuchungen zur

Beugung im konvergenten Bündel an den (400)-Netzebenen von Silizium. Mit der Bethe-Korrektur ergibt sich aus den Zweistrahlauswertungen des Abschnittes V.2 ein Strukturpotential von

$$|V_{400}(293\ K)| = 2{,}53 \pm 0{,}06 \text{ Volt} .$$

Es stimmt sehr gut überein mit dem aus den Vielstrahlauswertungen des Abschnittes V.5 ermittelten Wert

$$V_{400}(293\ K) = -2{,}54 \pm 0{,}03 \text{ Volt} .$$

Für die Beugung an den (220)-Netzebenen von Silizium errechnet sich aus der Gleichung (4.42) eine wesentlich höhere Korrektur. Sie beträgt, wenn man wieder exakt die erste Ordnung anregt und nur den Einfluß der zweiten und der minus ersten Ordnung berücksichtigt, für 1 MeV-Elektronen -10,7 Prozent. Die Auswirkungen der höheren Ordnungen sind vernachlässigbar gering. Eine Anwendung auf die im Abschnitt V.3 aus der Zweistrahlnäherung erhaltenen Ergebnisse liefert für das Strukturpotential V_{220} mit

$$|V_{220}(293\ K)| = 3{,}93 \text{ Volt} \quad \text{bis} \quad |V_{220}(293\ K)| = 4{,}06 \text{ Volt}$$

Werte, die stark von denjenigen, die aus Vielstrahlrechnungen ermittelt wurden, abweichen. Die Bethe-Korrektur ist hier für die Beugung im konvergenten Bündel in der oben angegebenen Form nicht mehr anwendbar. Dies ist darauf zurückzuführen, daß bei der Auswertung auf der Grundlage der Zweistrahlnäherung die Zunahme der Mehrstrahleffekte mit dem Abweichen von der Bragg-Einschußrichtung nicht berücksichtigt wird, und daß aber der Intensitätsverlauf für Winkel bis nahe an die zweite Beugungsordnung heran vermessen werden muß. Zu hohen Kristalldicken hin verbessern sich die Erbebnisse, die man durch die Zweistrahlnäherung und die Bethe-Korrektur erhält, da in diesem Fall alle auszuwertenden Intensitätsminima näher am Bragg-Reflex liegen und somit weniger von der Änderung des Mehrstrahleinflusses betroffen sind. Interessanterweise liegen die aus der Zweistrahlauswertung gewonnenen, nicht korrigierten Strukturpotentiale nahe bei den exakten Werten der Vielstrahlrechnungen. Das Zuneh-

men der Mehrstrahleinflüsse mit größer werdender Abweichung vom Bragg-Reflex führt in Verbindung mit dem Zweistrahl-Auswerteverfahren also zu einer teilweisen Kompensation der erforderlichen Bethe-Korrektur, täuscht aber, wie man durch einen Vergleich mit den Vielstrahlrechnungen beobachten kann, eine um mehrere Prozent zu hohe Kristalldicke vor.

Die Ergebnisse zeigen, daß bei der Beugung im konvergenten Bündel die Bethe-Korrektur in der oben beschriebenen Form nur bei sehr schwachen Mehrstrahlwechselwirkungen anwendbar ist. Eine verbesserte Korrektur-Methode, durch die der Anwendungsbereich der Zeistrahlnäherung ausgedehnt werden kann, muß die Winkelabhängigkeit der Mehrstrahleffekte berücksichtigen. An Untersuchungen zu diesem Problem arbeitet zur Zeit F. Gensler [6].

Die von Metherell [24] oder von Whelan und Humphreys [41] angegebenen Abschätzungen für die Beschleunigungsspannung, bei der die Zweistrahlnäherung zusammenbricht (siehe Abschnitt IV.5), liefern für die Beugung im konvergenten Bündel zu hohe Werte. Es wird deswegen die folgende, modifizierte Abschätzformel vorgeschlagen:

$$E_o = \frac{m_o \cdot c^2}{e}\left(\frac{g}{\sqrt{2|U_g(0)|}} - 1\right)$$

Bei der Beugung an Silizium ergibt sie für die (400)-Netzebenen eine Spannung von 1,5 MV und für die (220)-Netzebenen 650 kV. Ein gutes Kriterium für das Vorhandensein von deutlichen Mehrstrahleffekten ist das Auftreten des Critical-Voltage Effektes, auf den im nächsten Kapitel eingegangen wird. Mit Beschleunigungsspannungen die jeweils unterhalb der Critical-Voltages V_c liegen, liefert die oben angegebene Abschätzung brauchbare Werte.

VI.

UNTERSUCHUNGEN ZUM CRITICAL-VOLTAGE EFFEKT

VI.1 Einführung und Problemstellung

Bringt man einen Einkristall in eine Braggsche Reflexionsstellung, dann erwartet man, bei den in Elektronenmikroskopen üblichen Teilchenenergien bis 100 keV, hohe Intensität im gebeugten Strahl, wenn nicht gerade die Kristalldicke ein ganzzahlig-Vielfaches der Extinktionslänge ist. Steigert man jedoch die Energien auf 1000 keV und darüber hinaus, dann stellt man fest, daß beim Durchlaufen scharf definierter Beschleunigungsspannungen die Intensität in bestimmten Beugungsreflexen höherer Ordnung, unabhängig von der Kristalldicke, abrupt auf nahezu den Wert Null zusammenbricht und sofort wieder ansteigt. Diese Erscheinung bezeichnet man als den "Critical-Voltage Effekt". Er wurde erstmals von Nagata und Fukuhara [55], Uyeda [56] und Watanabe et al. [57] beobachtet. Seine Bedeutung liegt darin, daß er es gestattet, Strukturenfaktoren mit einer Genauigkeit zu bestimmen, die besser als bei allen anderen Elektronenbeugungsverfahren ist. Einen Vergleich der verschiedenen Methoden gibt Goodman [33]. Mit der hohen Empfindlichkeit der Critical-Voltage Meßverfahren wird es auch möglich, über die Temperaturabhängigkeit der Strukturfaktoren, die durch den Debye-Waller-Faktor beschrieben wird, Debye-Temperaturen zu bestimmen.

Die im folgenden dargestellten Untersuchungen befassen sich mit dem an den (111)-Netzebenen von Silizium auftretenden Third-Order Critical-Voltage Effekt. Wie schon im Abschnitt III.2 erwähnt, sind dafür Beschleunigungsspannungen über 1100 kV und ein möglichst hohes Winkelauflösungsvermögen erforderlich. Mit der erreichten Hochspannungsstabilität können die feinen Details in den Beugungsdiagrammen bis herunter zu einem Winkelabstand von $1 \cdot 10^{-4}$ rad registriert werden. Das Auftreten des Criti-

cal-Voltage Effektes ist in verschiedenartigen Beugungserscheinungen beobachtbar. Außer aus Kikuchi-Diagrammen kann kann die Critical-Voltage V_c auch aus Punktbeugungsbildern, aus Zonenachsen-Beugungsaufnahmen und aus Extinktionskonturen bestimmt werden. Unter diesen konventionellen Methoden liefert das Kikuchi-Verfahren die höchste Genauigkeit. Über derartige Messungen für den 333-Reflex von Silizium wird im Abschnitt VI.2 berichtet. In den Abschnitten VI.3 und VI.4 schließen sich einige theoretische Grundlagen des Critical-Voltage Effektes an, die sich aus der Betrachtung des Vielstrahlfalles der dynamischen Theorie ergeben.

Im Laufe der letzten Jahre wurde von einigen Autoren versucht, durch eine Kombination der Critical-Voltage Meßmethoden mit dem Verfahren der Beugung im konvergenten Bündel, das ebenfalls eine empfindliche Bestimmung von Strukturdaten erlaubt, eine weitere Steigerung der erreichbaren Genauigkeit zu erzielen. Im Abschnitt VI.5 wird darüber berichtet, inwieweit sich durch einen Vergleich von Ergebnissen, die aus den beiden Verfahren unabhängig voneinander gewonnen wurden, zusätzliche Information gewinnen läßt. Die Untersuchungen des Abschnittes VI.6 befassen sich mit der direkten Beobachtbarkeit des Critical-Voltage Effektes im konvergenten Bündel, von der eine besonders hohe Genauigkeit erwartet wird. Von speziellem Interesse ist in diesem Zusammenhang der Einfluß von Absorptionserscheinungen bei der Berechnung von rocking curves für die Critical-Voltage V_c.

In der deutschsprachigen Literatur wird im Zusammenhang mit der Beugung im konvergenten Bündel gelegentlich dann von einer kritischen Spannung gesprochen, wenn die spannungsabhängige Extinktionslänge einen Wert annimmt, für den die Kristalldicke ein ganzzahlig-Vielfaches ist (siehe z. B. Wurster [45]). Dieser Fall darf nicht mit dem hier beschriebenen Critical-Voltage Effekt verwechselt werden.

VI.2 Der Critical-Voltage Effekt am 333-Reflex von Silizium in Kikuchi-Beugungsdiagrammen

Eine markante, auf den Critical-Voltage Effekt zurückzuführende Erscheinung ist das Verschwinden von Kikuchi-Linienpaaren höherer Beugungsordnungen bei der Beschleunigungsspannung V_c. Sie wurde zum ersten Mal von Watanabe et al. [57] beobachtet. Die niederste Spannung, bei der dieser Effekt an Silizium-Einkristallen auftritt, die sich auf Zimmertemperatur befinden, liegt etwas oberhalb von 1100 kV. Es verschwinden die Kikuchi-Linien der dritten Beugungsordnung für die (111)-Netzebenen, was als Third-Order Critical-Voltage Effekt bezeichnet wird. Ein Second-Order Critical-Voltage Effekt kann an Kristallen mit Diamantstruktur für die (111)-Netzebenen nicht auftreten, weil es sich beim 222-Reflex um einen "verbotenen Reflex" handelt. Für diesen ist der geometrische Strukturfaktor Q_{222} gleich Null. Die Abb. 32 zeigt das System der Kikucki-Linien der (111)-Netzebenen eines 1,9 um dicken Silizium-Einkristalles bei Beschleunigungsspannungen zwischen 736 kV und 1217 kV. Bei 1100 ± 15 kV ist das Linienpaar des 333-Reflexes nicht mehr sichtbar. Ebenfalls sehr schwach werden die 111-Kikuchi-Linien. Mit dem Durchlaufen der Spannung V_c ist außerdem eine Umkehr der Asymmetrie dieser Linien festzustellen. Der erste experimentelle Wert für diesen Critical-Voltage Effekt wurde 1972 von Thomas [58] mit V_c = 1113 ± 6 kV angegeben.

Eine Steigerung der Genauigkeit mit der die Spannung V_c gemessen werden kann gelingt, wenn man zu geringeren Kristalldikken übergeht, und mit einem parallelen Elektronenstrahl exakt die dritte Ordnung anregt. In der Abb. 33 sind solche Beugungsdiagramme für Spannungen zwischen 1024 kV und 1229 kV dargestellt. In dem inelastischen Streuuntergrund der stark belichteten Diagramme lassen sich die Kikuchi-Linien besonders gut beobachten.

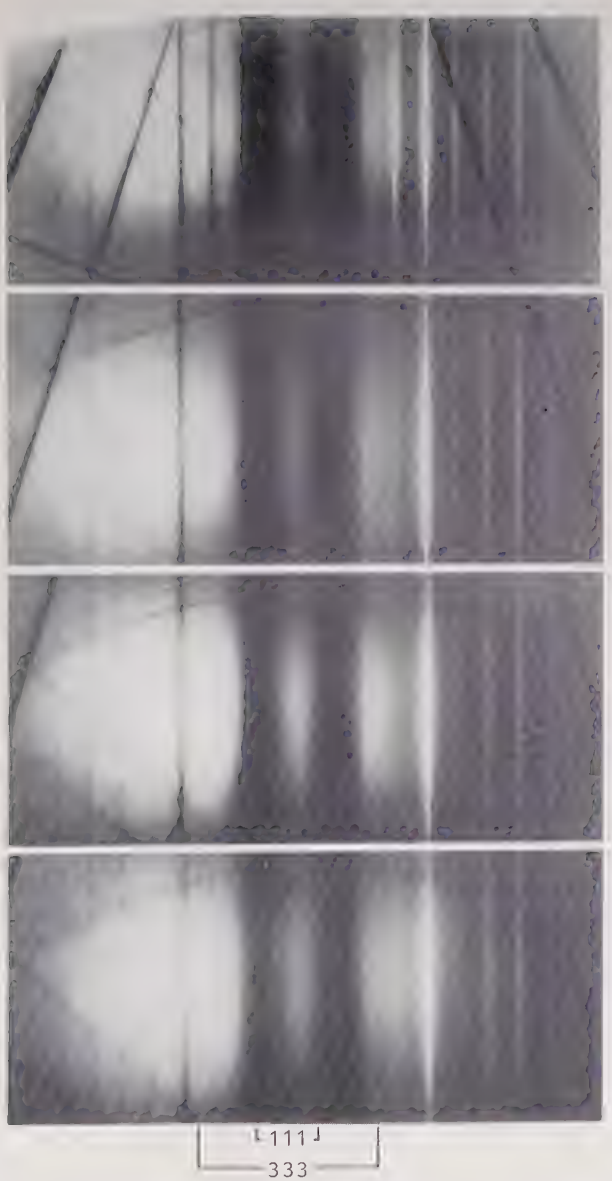


Abb. 32: Beobachtung des Third-Order Critical-Voltage Effektes im System der Kikuchi-Linien der (111)-Netzebenen eines 1,9 um dicken Silizium-Einkristalles. Beim Durchlaufen der Critical-Voltage verschwinden die Linienpaare der ersten und dritten Ordnung um mit umgekehrter Asymmetrie wieder aufzutauchen.

Durch die Auswertung einer größeren Anzahl von Diagrammen kann als experimenteller Wert für die Critical-Voltage V_c des 333-Reflexes an sich auf Zimmertemperatur befindlichen Silizium-Einkristallen angegeben werden:

$$V_c(333) = 1106 \pm 7 \text{ kV} .$$

Dieses Ergebnis stimmt sehr gut mit dem von Hewat und Humphreys [32] gemessenen Wert von 1104 ± 6 kV überein, aus dem diese den Strukturfaktor für den 111-Reflex ermittelten. Auf die Auswertung der hier durchgeführten Messungen wird in den nachfolgenden Abschnitten eingegangen.

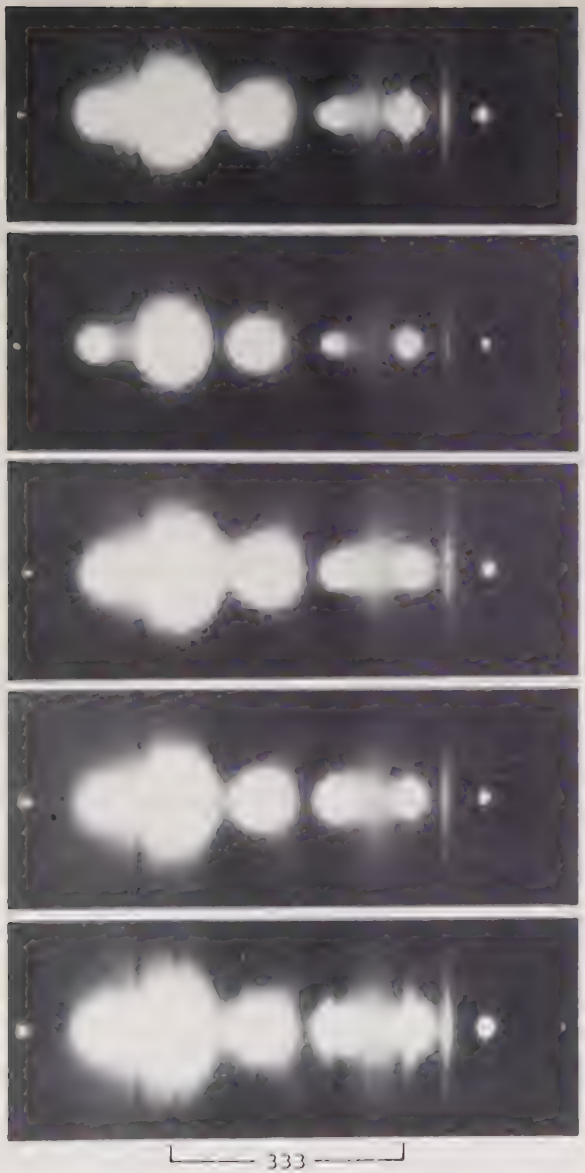


Abb. 33: Beobachtung des Critical-Voltage Effektes der (111)-Netzebenen eines 0,8 um dicken Silizium-Einkristalles an den sich im inelastischen Streuuntergrund eines Punktbeugungsdiagramms ausbildenden Kikuchi-Linien. Man erkennt das Verschwinden und die Symmetrieumkehr des Linienpaares der dritten Beugungsordnung.

VI.3 Näherungen für den Critical-Voltage Effekt

Der Critical-Voltage Effekt läßt sich nur unter Annahme des Vielstrahlfalles aus der dynamischen Theorie der Elektronenbeugung exakt erklären. Einen ersten, einfacheren Ansatz bietet aber schon die relativistische Betrachtungsweise der zweiten Betheschen Näherung, die erstmals auf den Critical-Voltage Effekt von Uyeda [56] und Cowley [59] angewendet wurde (siehe auch Abschnitt IV.5). Danach sind die modifizierten Strukturpotentiale $U_g = (2me/\hbar^2)\cdot V_g$ wegen der relativistischen Massenänderung der Elektronen abhängig von der Beschleunigungsspannung E_o . Mit dem relativistischen Korrekturfaktor

$$R = m/m_o = (1+e\cdot E_o/(m_o c^2)),$$

so daß

$$U_g(E_o) = R \cdot U_g(0)$$

ergibt sich durch die Berücksichtigung der schwachen Nebenreflexe für das korrigierte Strukturpotential $U_g^B(E_o)$:

$$U_g^B(E_o) = R\cdot\left\{U_g(0) - R\cdot \sum_{h\neq 0,g} \frac{U_h(0)\cdot U_{g-h}(0)}{K^2-(\vec{K}+\vec{h})^2}\right\} \qquad (6.1)$$

Regt man exakt die zweite Beugungsordnung an, und berücksichtigt nur eine Korrektur durch die erste Ordnung, dann ergibt sich:

$$U_2^B(E_o) = R\cdot\left\{U_2(0) - R\cdot(U_1(0)^2/g^2))\right\} \qquad (6.2)$$

Für einen bestimmten Wert des Korrekturfaktors R verschwindet der Inhalt der Klammer. Aus ihm ergibt sich die Beschleunigungsspannung, für die das effektive Strukturpotential $U_2^B(E_o)$ und damit auch die Intensität im Beugungsreflex 2g Null wird.

Verbesserte Ausdrücke für die Abschätzung der Critical-Voltage lassen sich herleiten, wenn man spezielle symmetrische Mehrstrahlprobleme, die sich noch analytisch lösen lassen, betrachtet. Aus ihnen läßt sich eine Korrektur für die Aufspaltung der Dispersionsfläche des Zweistrahlfalles ableiten. Der 3-Strahl-

fall, bei dem die zweite Ordnung angeregt wird und die erste Ordnung in der Rechnung mitberücksichtigt wird, ergibt nach Howie [30] für den minimalen Abstand der Zweige der Dispersionsfläche Δk_z:

$$K \cdot \Delta k_z = U_2 - \frac{1}{4}\left\{\sqrt{(g^2-U_2)^2+8U_1^2} - (g^2-U_2)\right\} \qquad (6.3)$$

Dieser geht gegen Null und damit die Extinktionslänge ξ_{2g} gegen unendlich wenn

$$U_2^2 + U_2 \cdot g^2 = U_1^2 \qquad (6.4)$$

erfüllt ist. Die Critical-Voltage läßt sich hieraus wieder berechnen, wenn man die relativistische Massenabhängigkeit der modifizierten Strukturpotentiale U_1 und U_2 berücksichtigt. g ist der Betrag des reziproken Gittervektors der ersten Beugungsordnung.

In analoger Form läßt sich auch eine Bedingung für den Third-Order Critical-Voltage Effekt ableiten. Sie lautet nach Lally et al. [60] :

$$2(U_1+U_3) = \sqrt{(2g^2+U_1-U_3)^2 + 4(U_1+U_2)^2} - \sqrt{(2g^2-U_1+U_3)^2 + 4(U_1-U_2)^2} \qquad (6.5)$$

VI.4 Der Critical-Voltage Effekt als spezieller Vielstrahlfall der dynamischen Theorie

Für eine vollständige Beschreibung des Critical-Voltage Effektes erweist sich die Formulierung der dynamischen Theorie der Elektronenbeugung auf der Grundlage des von Bethe [17] vorgeschlagenen Blochwellenmodelles als besonders gut geeignet. Sie liefert eine einfache physikalische Interpretation der auftretenden Phänomene.

Die Wellenvektoren $\vec{k}^{(j)}$ und die Intensitätsverteilungen der einzelnen Blochwellen im Kristall sind so miteinander verknüpft, daß sich immer eine konstante Gesamtenergie für die Elektronen ergibt. Die mit dem Kristallgitter periodische Intensitätsverteilung der j-ten Blochwelle ist im Vielstrahlfall:

$$\psi^{(j)}(\vec{r}) \cdot \psi^{(j)}(\vec{r})^{*} = 1 + \sum_{g} \sum_{\substack{h \\ h \neq g}} C_g^{(j)} \cdot C_h^{(j)*} \cdot \exp[i(\vec{g}-\vec{h}) \cdot \vec{r}] \qquad (6.6)$$

Die Blochwellen-Koeffizienten $C_g^{(j)}$ sind reell, wenn man sich auf zentrosymmetrische Kristalle und eine Betrachtungsweise beschränkt, bei der der Einfluß der Absorption auf sie vernachlässigt wird, wie z. B. bei einer Störungsrechnung. In diesem Fall haben die Blochwellen immer dann besondere Symmetrieeigenschaften, wenn sich der Kristall in einer Braggschen Reflexionsstellung befindet. Metherell und Fisher [61] zeigten, daß für den Vielstrahlfall der systematischen Reihe bei Anregung des Reflexes m

$$\text{entweder} \quad C^{(j)}_{(m+n)/2} = + C^{(j)}_{(m-n)/2} \qquad (6.7)$$

$$\text{oder} \quad C^{(j)}_{(m+n)/2} = - C^{(j)}_{(m-n)/2} \quad \text{gilt,}$$

wobei $n = \pm 2, \pm 4, \ldots$ für gerade m
$n = \pm 1, \pm 3, \ldots$ für ungerade m .

Im ersten Fall spricht man von einer symmetrischen und im zweiten Fall von einer antisymmetrischen Blochwelle. Aus den Gleichungen (6.6) und (6.7) ergibt sich, daß die symmetrischen

Blochwellen hohe und die antisymmetrischen Blochwellen keine Intensität in den Netzebenen aufweisen. Die Gleichungen (6.7) lauten bei Anregung eines Reflexes dritter Ordnung

$$C_2^{(j)} = + C_1^{(j)} \ , \ C_3^{(j)} = + C_o^{(j)} \ , \ C_4^{(j)} = + C_{-1}^{(j)} \ ...$$

im symmetrischen Fall, und (6.8)

$$C_2^{(j)} = - C_1^{(j)} \ , \ C_3^{(j)} = - C_o^{(j)} \ , \ C_4^{(j)} = - C_{-1}^{(j)} \ ...$$

im antisymmetrischen Fall. Welche Symmetrie die einzelne Blochwelle im konkreten Fall besitzt, hängt nicht nur von den Strukturdaten des durchstrahlten Kristalles sondern auch von der Energie der Elektronen ab.

Ebenfalls energieabhängig sind die Wellenvektoren $\vec{k}^{(j)}$ der Blochwellen. Für eine gegebene Elektronenenergie kann man sie mittels der Dispersionsfläche als Funktion der Einschußrichtung darstellen. Die Abb. 34 und 35 zeigen Schnitte durch Dispersionsflächen, die für die systematischen Reihen 111 und 220 von Silizium berechnet wurden. Bei Anregung der m-ten Beugungsordnung nehmen die Komponenten $k_z^{(j)}$ Werte an, die in der Form $k_z^{(j)} - K_z$ über $(m/2) \cdot k_x/g$ aufgetragen sind. Jeweils bei exakter Anregung eines Reflexes wird der Abstand zwischen einzelnen Zweigen der Dispersionsfläche minimal, bleibt aber endlich. Im Zweistrahlfall ist diese minimale Aufspaltung Δk_z gleich dem 2π -fachen des Kehrwertes der Extinktionslänge ξ_g. Vielstrahlrechnungen zeigen, daß es Beschleunigungsspannungen gibt, für die der Abstand zwischen zwei Zweigen der Dispersionsfläche besonders gering wird. Diese als "Critical-Voltages V_c" bezeichneten Spannungen (eine genauere Definition erfolgt noch weiter unten), liegen allerdings für die meisten Materialien weit oberhalb von 100 kV und sind somit normalen Elektronenmikroskopen nicht zugänglich.

Für die systematische Reihe 111 von Silizium tritt ein Critical-Voltage Effekt bei 1106 kV auf. Bei dieser Elektronen-Beschleunigungsspannung berühren sich nahezu die durch j = 3 und

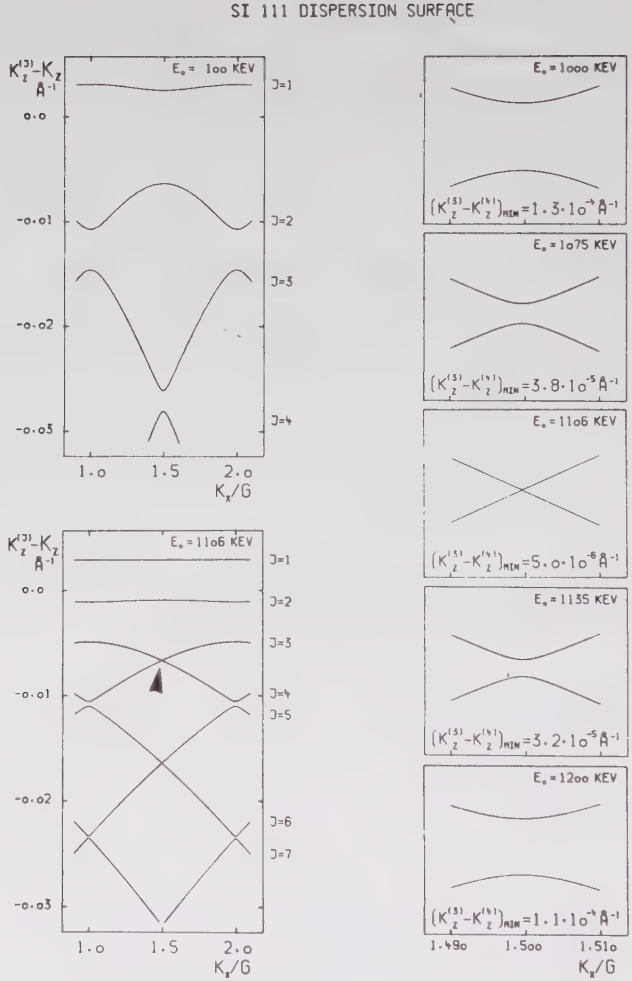


Abb. 34: Aus Vielstrahlrechnungen ermittelte Dispersionsflächen für die systematische Reihe 111 von Silizium; links oben bei 100 kV, links unten bei V_C = 1106 kV. Der durch einen Pfeil markierte Berührungspunkt der Zweige 3 und 4 ist in der rechten, senkrechten Reihe für 5 Spannungen im Bereich von V_C stark vergrößert dargestellt.

j = 4 gekennzeichneten Zweige der Dispersionsfläche, wenn exakt die dritte Beugungsordnung angeregt wird. Wegen der Periodizität der Dispersionsfläche ist dies dann auch für alle anderen ungeradzahligen Ordnungen gegeben. In der Abb. 34 ist die Dispersionsfläche für die systematische Reihe lll von Silizium bei verschiedenen Beschleunigungsspannungen dargestellt. Der Abstand zwischen den Zweigen 3 und 4 wird zwar sehr klein bei der Spannung V_c, verschwindet aber nicht völlig. Die minimale Aufspaltung ist in den in der rechten Bildhälfte dargestellten, stark vergrößerten Ausschnitten angegeben. Es wird hier die von Humphreys und Fisher [62] vorgeschlagene Kennzeichnung der Blochwellen verwendet, bei der diese nach abnehmendem Betrag der z-Komponente ihrer Wellenvektoren numeriert werden. Für die Blochwelle j = 1 ist also $k_z^{(j)}$ am größten. Erhöht man die Beschleunigungsspannung weiter, dann kann auch eine Annäherung zwischen weiteren Zweigen der Dispersionsfläche, also ein Critical-Voltage Effekt für noch höhere Beugungsordnungen auftreten. Dieser Aspekt soll hier aber nicht weiter verfolgt werden.

Mit den im Kapitel V berechneten und gemessenen Strukturpotentialen lassen sich auch für die systematische Reihe 220 von Silizium Dispersionsflächen berechnen. Es zeigt sich, daß auch hier ein Critical-Voltage Effekt, allerdings erst bei 1347 kV, für den 440-Reflex auftritt. Wie der Abb. 35 zu entnehmen ist, wird in diesem Fall der Abstand der Zweige j = 2 und j = 3 der Dispersionsfläche besonders klein.

Bei der Berechnung der Dispersionsflächen der Abb. 34 und 35 wurden Absorptionserscheinungen vernachlässigt, also rein reelle Strukturpotentiale verwendet. Über den Einfluß der Absorption bei der Berechnung der Dispersionsfläche, wird im Abschnitt VI.6 noch berichtet werden.

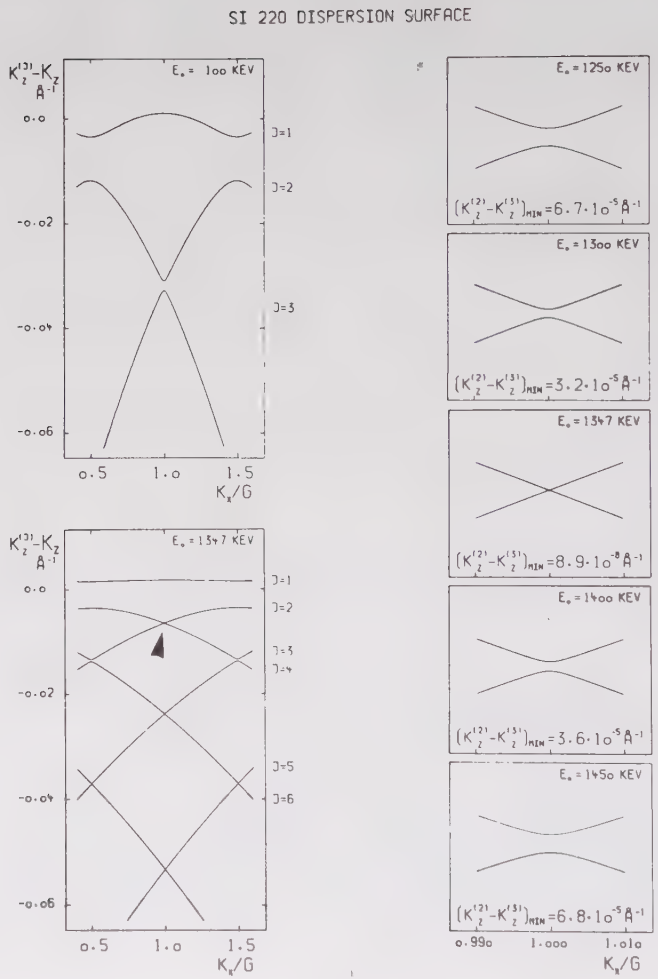


Abb. 35: Dispersionsflächen für die systematische Reihe 220 von Silizium; links oben bei 100 kV, links unten bei V_C = 1347 kV. Hier wird der Abstand zwischen den Zweigen 2 und 3 sehr gering. Rechts ist wieder die Umgebung des durch den Pfeil markierten Bereiches vergrößert dargestellt.

Im folgenden wird die Abnahme der Intensität im Beugungsreflex der dritten Ordnung I_{3g} bei Annäherung an die Spannung V_c im Falle des Third-Order Critical-Voltage Effektes betrachtet. Nach Gleichung (4.32) ist

$$I_{3g}(D) = \left| \sum_j C_o(j)^* \cdot C_3(j) \cdot \exp(ik_z(j) \cdot D) \cdot \exp(-q(j) \cdot D) \right|^2 \quad (6.9)$$

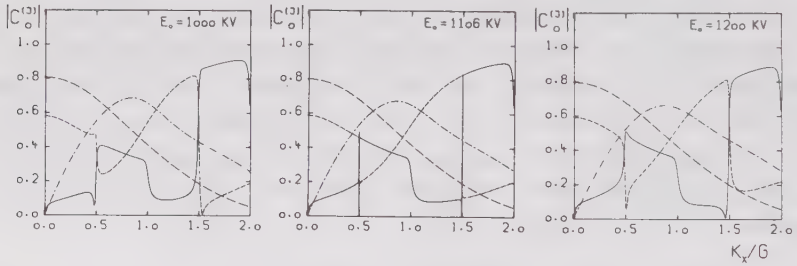
Dies kann so interpretiert werden, daß innerhalb des Kristalles die j-te Blochwelle zu der Intensität im Reflex 3g durch eine ebene Welle mit der Amplitude $C_o(j)^* \cdot C_3(j)$ beiträgt. Diese Welle wird mit $\exp(-q(j) \cdot D)$ gedämpft. Die Intensität im Reflex ist das Betragsquadrat der Summe der Amplituden der einzelnen gedämpften ebenen Wellen. Wird exakt der Reflex dritter Ordnung angeregt, dann ergibt sich nach (6.8) für eine symmetrische Blochwelle $C_3(j) = + C_o(j)$ und für eine antisymmetrische Blochwelle $C_3(j) = - C_o(j)$, und damit für die Amplituden der ungedämpften Wellen entweder $+ C_o(j)^2$ oder $- C_o(j)^2$.

Die Blochwellen-Erregungskoeffizienten $\alpha(j) = C_o(j)^*$ sind sehr stark von der Einschußrichtung der Elektronen abhängig. Sie sind im Teil a der Abb. 36 für die ersten vier Blochwellen im Falle der systematischen Reihe lll von Silizium aufgetragen. Bei Anregung der dritten Ordnung ($k_x/g = 1{,}5$) werden $C_o(3)$ und $C_o(4)$ betragsmäßig einander gleich, sind aber größer als $|C_o(2)|$ und $|C_o(1)|$. Bei der Spannung V_c = 1106 kV ist die Richtungsabhängigkeit besonders extrem. Im Teil b der Abb. 36 sind zusätzlich die Absorptionskoeffizienten $q(j)$ für die ersten vier Blochwellen wiedergegeben. Auf ihre Berechnung bei der Spannung V_c wird noch im Abschnitt VI.6 näher eingegangen. Wie zu erwarten, werden die Blochwellen mit den höchsten kinetischen Energien, also 1 und 2, am stärksten absorbiert. Bei nicht zu geringer Kristalldicke ergibt sich insgesamt, daß nur noch die Blochwellen 3 und 4 wesentlich zur Intensität I_{3g} beitragen. Wenn die Summe der Amplituden der restlichen Blochwellen durch eine kleine Größe Δ beschrieben wird, dann ergibt sich:

$$I_{3g}(D) = \left| \sum_{j=3,4} S^{(j)} \cdot C_o(j)^2 \cdot \exp(ik_z(j) \cdot D) \cdot \exp(-q^{(j)} \cdot D) + \Delta \right|^2 \quad (6.10)$$

wobei $S^{(j)} = +1$ für eine symmetrische Blochwelle
und $S^{(j)} = -1$ für eine antisymmetrische Blochwelle ist.

a)



b)

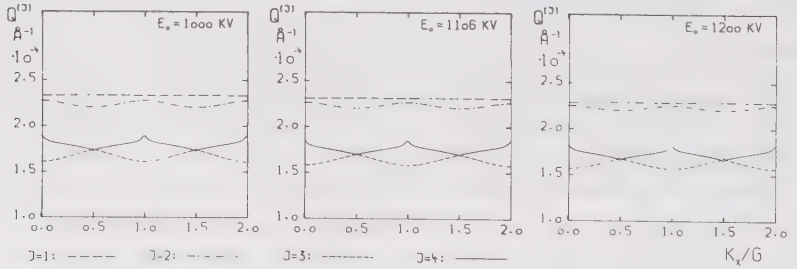


Abb. 36: a) Blochwellen-Erregungskoeffizienten für die systematische Reihe 111 von Silizium im Bereich der Critical-Voltage V_c = 1106 kV.

b) Blochwellen-Absorptionskoeffizienten als Funktion der Einschußrichtung (V'_{111} = -0,0875 Volt).

Die durchstrahlbaren Kristalldicken liegen für Elektronenenergien von 1 MeV bei einigen 10^4 Å. Wenn sich bei der Critical-Voltage V_c die z-Komponenten der Wellenvektoren $\vec{k}^{(3)}$ und $\vec{k}^{(4)}$ bis auf Werte von weniger als $5 \cdot 10^{-6}$ $Å^{-1}$ aneinander annähern, wie dies in der Abb. 34 dargestellt ist, dann durchlaufen die beiden Blochwellen den Kristall, ohne daß sich zwischen ihnen eine merkliche Phasenverschiebung aufbaut. Sind zusätzlich die Amplituden der beiden in den Reflex 3g laufenden ebenen Wellen entgegengesetzt gleich, und dies ist der Fall wenn es sich bei der einen um eine symmetrische und bei der anderen um eine antisymmetrische Blochwelle handelt, dann ergibt sich destruktive Interferenz über die ganze Kristalldicke. Im Reflex 3g ist dann die Intensität, unabhängig von der Kristalldicke, bis auf den geringen Beitrag der übrigen Blochwellen, der in Gleichung (6.10) durch die Größe Δ beschrieben wird, minimal. Im Gegensatz zu den Ergebnissen, die die Näherungen des Abschnittes VI.3 liefern, braucht sie aber nicht gleich Null zu werden (siehe dazu auch Abb. 49). Im Zweistrahlfall wird die Intensität im Bragg-Reflex nur dann gleich Null, wenn die Kristalldicke ein ganzzahlig-Vielfaches der Extinktionslänge ξ_g ist.

Die obigen Betrachtungen zum Critical-Voltage Effekt können auch ausgedehnt werden auf nicht-zentrosymmetrische Kristalle, bei denen die Blochwellen keine definierte Symmetrie mehr aufweisen. Ein Intensitätsminimum tritt immer noch auf, wenn die zwei Blochwellen, deren Wellenvektoren entartet sind, die weit überwiegenden Beiträge zur Intensität in einem Reflex leisten.

Weitergehende theoretische Diskussionen des Critical-Voltage Effektes auf der Grundlage des Blochwellenmodelles können bei Hewat [63] oder z. B. bei Lally et al. [60] gefunden werden.

Die für dicke Einkristalle auftretenden Kikuchi-Beugungsdiagramme entstehen durch eine diffuse Aufweitung des einfallenden Elektronenstrahles in einen großen Winkelbereich aufgrund von inelastischen Streuprozessen und durch anschließende elastische Streuung eines Teiles der Elektronen. Zur Beschreibung symmetrischer Kikuchi-Diagramme geben Thomas und Humphreys [34] ein einfaches Verfahren an. Es beruht auf dem Reziprozitätstheorem, das nach Pogany und Turner [64] für inelastische

Streuprozesse auf Intensitäten übertragbar ist, wenn die auftretenden Energieverluste gering sind. In die Richtung $\vec{k}$ können nur Elektronen elastisch gestreut werden, die sich zuvor aufgrund von inelastischen Prozessen in den Richtungen $...(\vec{k}-\vec{g})$, $\vec{k}$, $(\vec{k}+\vec{g})$, $(\vec{k}+2\vec{g})$ ... fortbewegten. Bei aus diesen Richtungen einfallenden Intensitäten I_g ist die in die Richtung $\vec{k}$ gestreute Intensität I_o nach dem Reziprokitätstheorem gleich der Summe der Intensitäten I_g', die in die Richtungen $...-(\vec{k}-\vec{g})$, $-\vec{k}$, $-(\vec{k}+\vec{g})$, $-(\vec{k}+2\vec{g})$ ... gestreut werden, wenn aus der Richtung $-\vec{k}$ die Intensität I_o einfällt. Geht man von einem winkelunabhängigen inelastischen Streuuntergrund aus, dann ist die Intensität des Kikuchi-Diagrammes in der Richtung $\vec{k}$ gleich der Summe der Intensitäten in allen Beugungsreflexen der betrachteten systematischen Reihe bei der Einfallsrichtung $\vec{k}$ der Elektronen. Daraus ergibt sich mit geeigneten Umformungen schließlich für die Intensität I in der Richtung $\vec{k}$:

$$I(D) = \sum_g I_g(D) = \sum_j \left|C_o(j)\right|^2 \cdot \exp(-2q^{(j)} \cdot D) \qquad (6.11)$$

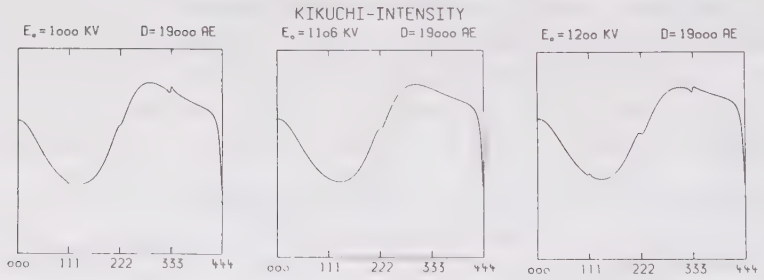


Abb. 37: Berechnete Intensitäten in symmetrischen Kikuchi-Beugungsdiagrammen bei 1000 kV, bei der Critical-Voltage V_C = 1106 kV und bei 1200 kV. Bei der Spannung V_C verschwinden die Kikuchi-Linien der ersten und dritten Beugungsordnung. (V'_{111} = -0,0875 Volt)

Für die Berechnung der Intensitäten in Kikuchi-Beugungsdiagrammen dicker Kristalle werden in diesem Modell lediglich die Erregungs- und Absorptionskoeffizienten der Blochwellen benötigt. Diese sind aus Vielstrahlrechnungen zu ermitteln. In der Abb. 36 sind sie für die ersten vier Blochwellen bei einer Spannung unterhalb von V_c, bei V_c = 1106 kV und bei einer Spannung oberhalb von V_c dargestellt. Für diese drei Fälle sind in der Abb. 37 die berechneten Kikuchi-Intensitätsverläufe dargestellt. Es zeigt sich sehr schön das Verschwinden der Kikuchi-Linien der ersten und dritten Ordnung bei der Beschleunigungsspannung V_c. Bei einem Vergleich mit den experimentellen Diagrammen der Abb. 32 ist zu beachten, daß die Kurven der Abb. 37 nur für symmetrische Diagramme (Einschuß parallel zur Netzebenenschar) gelten. Zur Berechnung nicht-symmetrischer Diagramme muß nach Thomas [58] zusätzlich eine aus experimentellen Daten abzuleitende Gewichtung für die Beiträge der einzelnen Richtungen im inelastischen Streuuntergrund zur Intensität eingeführt werden. Hier sei darauf verzichtet. Es muß nochmals darauf hingewiesen werden, daß sich die Kurven der Abb. 37 durch die Berücksichtigung der anomalen Absorption ergeben, und daß keine anisotrope Richtungsverteilung des inelastischen Streuuntergrundes vorausgesetzt wird.

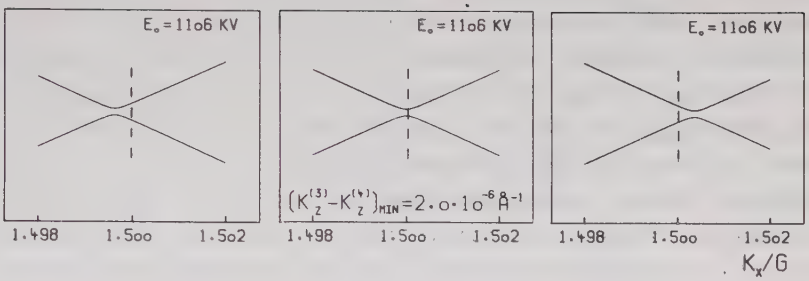
Die Umkehr der Asymmetrie der Kikuchi-Linien und ihr Verschwinden bei der Beschleunigungsspannung V_c ist mit der in der Abb. 36 sichtbaren Umkehr der Symmetrie der Erregungskoeffizienten bei der ersten und dritten Ordnung gekoppelt. Bei der Berechnung der Absorptionskoeffizienten der Abb. 36 wurde ein spezieller Satz von Absorptionspotentialen verwendet. Im Abschnitt VI.6 werden noch Kurven für davon abweichende Absorptionspotentiale vorgestellt und diskutiert (siehe Abb. 48).

Exakt wird die Critical-Voltage V_c als die Spannung definiert, bei der die Blochwellen ihre Symmetrie austauschen.

VI.5 Auswertung von Critical-Voltage-Beugungsexperimenten unter Berücksichtigung von Messungen im konvergenten Bündel

Die Beugung im konvergenten Bündel ist die bedeutendste, und neben dem Critical-Voltage Meßverfahren genaueste Elektronenbeugungsmethode zur Bestimmung von Strukturpotentialen. Nach Goodman [33] ist in der Form, in der sie von Kossel und Möllenstedt angewendet wurde, zusammen mit der Zweistrahlauswertung nach Mac Gillavry eine Genauigkeit von drei Prozent zu erreichen. Diese konnte in neuerer Zeit mit der Verfügbarkeit leistungsfähiger Computer und der weiterentwickelten Vielstrahltheorie auf etwa ein Prozent gesteigert werden (siehe z. B. Goodman und Lehmpfuhl [65] oder auch die im Kapitel V der vorliegenden Arbeit erzielten Ergebnisse). Eine Übersicht über weitere Arbeiten und Elektronenbeugungsmethoden zur Strukturfaktorbestimmung ist bei Goodman [33] zu finden. Im nachfolgenden wird über die Auswertung der Critical-Voltage Messungen des Abschnittes VI.1 berichtet. Obwohl die dabei erzielten Ergebnisse sehr genau sind, wird es sich zeigen, daß durch einen Vergleich mit Messungen im konvergenten Bündel zusätzliche Informationen gewonnen werden können.

Die Auswertung der Critical-Voltage Beugungsexperimente erfolgt durch eine Vielstrahlrechnung in der nur die Systematische Reihe berücksichtigt wird. Die Zahl der Reflexe wird dabei sukzessive so lange erhöht, bis sich, bezogen auf die experimentelle Meßgenauigkeit, keine wesentliche Änderung des Wertes für die Spannung V_c mehr ergibt. Bei der Behandlung des Critical-Voltage Effektes am 333-Reflex von Silizium ist damit eine 16-Strahlrechnung gut ausreichend. Der Gesamtumfang der berücksichtigten Beugungsordnungen muß so gewählt werden, daß sich eine symmetrische Problemstellung ergibt. Bei einer Anregung der dritten Ordnung ist also eine gerade Anzahl von Reflexen zu verwenden. Im Falle einer 16-Strahlrechnung sind dies die Reflexe $\bar{6}\bar{6}\bar{6}$ bis 999. Ein Abweichen von der Symmetrie-Bedingung führt zu einer Deformation der Dispersionsfläche und damit zu einer Verschiebung der



$\overline{333}$ bis 888 $\overline{444}$ bis 777 $\overline{555}$ bis 666

Abb. 38: Aus einer 12-Strahlrechnung ermittelter Schnitt durch die Zweige 3 und 4 der Dispersionsfläche für die systematische Reihe der (111)-Netzebenen von Silizium bei der Critical-Voltage (siehe auch Abb. 34). Eine nichtsymmetrische Auswahl der in die Rechnung eingehenden Reflexe führt zu einer Deformation der Dispersionsfläche.

Intensitätsverteilungen in berechneten Beugungsdiagrammen. Dieser Einfluß auf die Dispersionsfläche ist bei der Critical-Voltage besonders gut beobachtbar (siehe Abb. 38).

Die Vielstrahlrechnungen zeigen, daß die Beschleunigungsspannung V_C, bei der der Critical-Voltage Effekt auftritt, besonders empfindlich vom Strukturpotential der ersten Beugungsordnung abhängig ist. Dadurch wird eine Bestimmung dieses Strukturpotentiales mit hoher Genauigkeit möglich. Es erklärt sich auch daraus, daß die einfachen Gleichungen (6.2), (6.4) und (6.5) relativ gute Näherungen für die Critical-Voltage V_C liefern. Im Fall des Third-Order Critical-Voltage Effektes an den (111)-Netzebenen von Silizium ergibt sich bei einer Variation des Strukturpotentiales V_{111} um ein Prozent eine Verschiebung von V_C um 28 kV, bei einer einprozentigen Änderung von V_{333} dagegen nur um 5 kV. Aus den Kikuchi-Diagrammen des Abschnittes VI.2 (siehe Abb. 32 und 33) konnte die Critical-Voltage bestimmt werden zu V_C = 1106 ± 7kV. Geht man davon aus, daß die Strukturpotentiale der höheren Beugungsordnungen hinreichend genau bekannt sind, wird damit der Betrag des Strukturpotentiales der ersten Ordnung V_{111} auf ± 0,25 Prozent festgelegt. Einschrän-

kungen dieser Genauigkeit können sich im Experiment durch die Anregung nicht-systematischer Nebenreflexe, durch eine Strahlenschädigung oder durch eine Aufheizung des Einkristalles im Elektronenstrahl ergeben. Von Hewat [63] für den hier beschriebenen Critical-Voltage Effekt an Silizium durchgeführte, sorgfältige Untersuchungen zeigten jedoch, daß es gelingt, den Einfluß dieser Effekte vernachlässigbar klein zu halten. Der in den Debye-Waller Faktor eingehende Temperaturfaktor B, der für die Berechnung der Strukturpotentiale höherer Ordnung benötigt wird, ist mit $B = 0{,}4613 \pm 0{,}0027$ Å^2 aus den Messungen von Aldred und Hart [50] ausreichend genau bekannt.

Obwohl es sich beim 222-Reflex von Silizium um einen "verbotenen" Reflex handelt, dessen geometrischer Strukturfaktor Q_{222} gleich Null ist, nimmt das Strukturpotential V_{222} einen von Null verschiedenen Wert an. Dies ist auf eine Deformation der Ladungsverteilung der Atome durch die Bindungen im Kristall und auf nicht-symmetrische thermische Oszillationsbewegungen zurückzuführen. Mit diesen Effekten hat sich schon eine Reihe von Autoren beschäftigt. Eine detaillierte Diskussion ist in den Arbeiten von Aldred und Hart [50] oder von Hewat [63] zu finden. Wenn das Strukturpotential V_{222} nicht bekannt ist, können aus der Critical-Voltage Messung nur noch Kombinationen von V_{111} und V_{222} ermittelt werden, für die jeweils $V_c = 1106$ kV ist. Ein entsprechender funktionaler Zusammenhang ist in der Abb. 39 dargestellt. Bei einem Wechsel des Potentialursprungs wechselt für V_{111} das Vorzeichen, während es für V_{222} erhalten bleibt. Aus diesem Grund ist in der Abb. 39 für V_{111} der Betrag aufgetragen.

Für Silizium existiert eine Vielzahl von Röntgenstrukturuntersuchungen. Als besonders präzise werden in der Literatur übereinstimmend die Arbeiten von Tanemura und Kato [66] und von Aldred und Hart [50] bezeichnet. Entnimmt man aus ihnen den Röntgenstrukturfaktor F^x_{222}, dann kann man mittels der Gleichung (4.59) das Strukturpotential V_{222} berechnen und anschließend V_{111} aus dem Diagramm der Abb. 39 ablesen. Auf diese Weise bestimmten Hewat und Humphreys [32] aus Critical-Voltage Messungen Strukturdaten für die 111-Reflexe von Silizium und Germanium, die sehr gut mit den oben erwähnten Röntgenstrahlmessungen übereinstimmten.

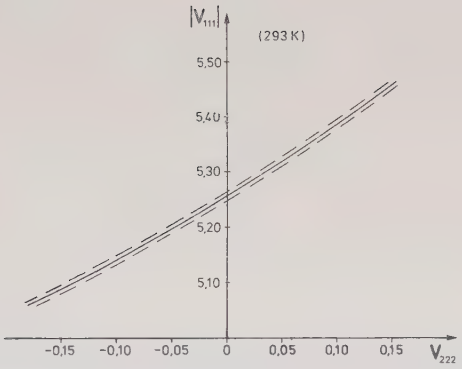
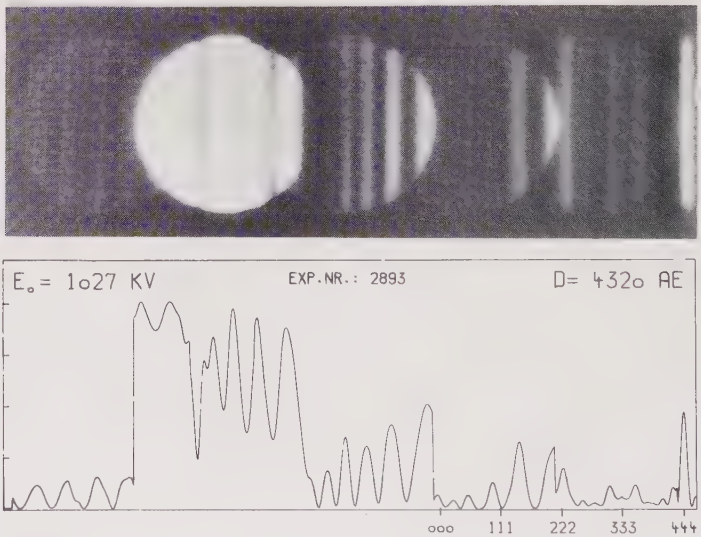


Abb. 39: Aus dem in Kikuchi-Beugungsdiagrammen beobachteten Critical-Voltage Effekt gewonnener Zusammenhang zwischen den Strukturpotentialen des 111- und des 222-Reflexes von Silizium. Die gestrichelten Linien geben die Fehlerschranken an.

1976 berichteten Shishido und Tanaka [67] über Critical-Voltage Messungen an Germanium (V_c = 908 kV) und zusätzliche Beugungsexperimente im konvergenten Bündel in einem zweiten Gerät bei 100 kV. Durch die Kombination der aus beiden Verfahren separat gewonnenen Ergebnisse, konnten sie die Strukturpotentiale V_{111} und V_{222} für Germanium mit hoher Genauigkeit bestimmen, ohne auf Röntgenstrukturfaktoren zurückgreifen zu müssen.

In unserer Beugungsanlage können sowohl Messungen zum Critical-Voltage Effekt in Kikuchi-Diagrammen als auch zur Beugung im konvergenten Bündel bis zu Elektronenenergien von über 1,2 MeV durchgeführt werden. Für einen gewissen Kristalldickenbereich, der für Silizium etwa bei 1 µm liegt, können bei 1 MeV beide Methoden an ein und demselben Kristall eingesetzt werden. In den Abb. 41 und 42 sind Beugungsaufnahmen im konvergenten Bündel an den (111)-Netzebenen von Silizium wiedergegeben. Die Beschleunigungsspannungen liegen unter- und oberhalb der Critical-Voltage für den 333-Reflex. In der Abb. 41 entspricht die Kristalldicke

etwa derjenigen, die bei der Aufzeichnung der Kikuchi-Diagramme der Abb. 33 verwendet wurde. In der Umgebung des Bragg-Reflexes 333 zeigen beide Diagramme (Abb. 40 und 41) leicht asymmetrische Intensitätsverteilungen. Diese Asymmetrie kehrt sich mit dem Durchgang durch V_c um, und verhält sich damit wie die Asymmetrie der Kikuchi-Linien der dritten Ordnung. Die Diagramme wurden durch Vergleich mit aus Vielstrahlrechnungen ermittelten rocking curves ausgewertet. Dabei kamen verschiedene Kombinationen von Strukturpotentialen V_{111} und V_{222} zur Verwendung, die durch den in der Abb. 39 dargestellten Zusammenhang vorgegeben sind. Die beste Übereinstimmung mit den experimentellen Resultaten erhält man für:



V_{000}=11.50 V_{111}=-5.12 V_{222}=-0.125 V_{333}= 1.19 V_{444}=-1.06 V_{555}= 0.49

V^I_{000}= 0.61 V^I_{111}=-0.10 V^I_{222}=-0.002 V^I_{333}= 0.05 V^I_{444}=-0.06 V^I_{555}= 0.03

Abb. 40: Beugung im konvergenten Bündel an den (111)-Netzebenen eines 432 nm dicken Silizium-Einkristalles. Durch das Primärbündel werden die dritte und vierte Ordnung direkt angeregt. Am Auftreten mehrerer deutlich sichtbarer Reflex-Scheiben erkennt man den Vielstrahlfall. Mit 1027 kV liegt die Beschleunigungsspannung unterhalb von V_c = 1106 kV.

$$V_{111}(293\ K) = -5{,}12 \pm 0{,}02\ \text{Volt}$$

$$F^{x}_{111}(\text{stat.}) = 60{,}78 \pm 0{,}08$$

und

$$V_{222}(293\ K) = -0{,}125 \pm 0{,}02\ \text{Volt}$$

$$F^{x}_{222}(\text{stat}). = 1{,}86 \pm 0{,}3\ .$$

Eine Tabelle entsprechender Ergebnisse aus Röntgen- und Elektronenbeugungsexperimenten anderer Autoren ist bei Gjønnes [74] zu finden.

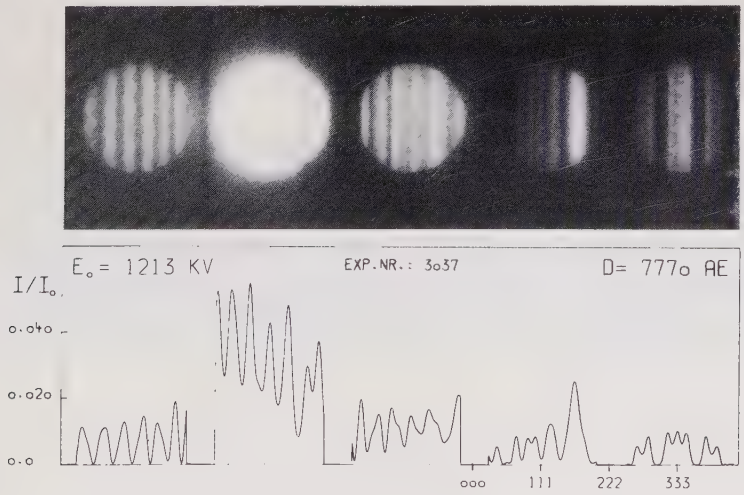


Abb. 41: Beugung im konvergenten Bündel an den (111)-Netzebenen eines 777 nm dicken Silizium-Einkristalles. Die Beschleunigungsspannung liegt mit 1213 kV oberhalb von V_C. In der Umgebung des 333 Bragg-Reflexes ist eine leichte Asymmetrie der Intensitätsverteilung zu beobachten, die sich gegenüber dem Diagramm der Abb. 40 umgekehrt hat. Auswertung durch numerisch berechnete Vielstrahl-rocking curve.

VI.6 Untersuchungen zur direkten Beobachtbarkeit des Critical-Voltage Effektes im konvergenten Bündel

Durch das Verfahren der Beugung im konvergenten Bündel kann die sich mit variierender Einschußrichtung der Elektronen empfindlich ändernde Intensität der einzelnen Beugungsreflexe in sehr feiner Form registriert werden. Die in der Reflexscheibe der dritten Beugungsordnung sichtbaren Intensitätsstreifen im Diagramm der Abb. 42 haben z. B. nur eine Breite, die einem Winkelbereich von $1 \cdot 10^{-4}$ rad entspricht. Durch eine sorgfältige Auswertung solcher Beugungsdiagramme läßt sich eine große Menge von Information gewinnen.

1977/78 schlugen Moodie, Humphreys, Imeson und Sellar [68,69] vor, durch eine Kombination der Verfahren der Beugung im konvergenten Bündel und der Critical-Voltage Messungen die bisher in der Elektronenbeugung bei der Bestimmung von Strukturpotentialen erreichte Genauigkeit weiter zu steigern. Dabei sollen nicht nur, wie im Abschnitt VI.5 beschrieben, die aus beiden Methoden separat gewonnenen Ergebnisse miteinander verglichen, sondern das konvergente Bündel direkt zur Beobachtung von Effekten eingesetzt werden, die bei der Critical-Voltage auftreten. Der Vorschlag beruht darauf, daß in von ihnen berechneten rocking curves an der Stelle des Bragg-Reflexes, für den der Critical-Voltage Effekt vorliegt, eine extrem scharfe Einsattelung der Intensität auftritt. In diesen Rechnungen wurden die Absorptionserscheinungen durch die strenge Lösung des komplexen Eigenwertproblemes berücksichtigt, wobei die von Humphreys und Hirsch [28] angegebenen Absorptionspotentiale Verwendung fanden. Der Intensitätszusammenbruch tritt nur in unmittelbarer Nähe der Critical-Voltage auf. Mit der Annährung an die Spannung V_c vertieft sich die Einsattelung der Intensität. Gleichzeitig verringert sich auch ihre Breite. Sie umfaßt etwa einen Winkelbereich von 10^{-5} rad. Die Beobachtung dieser Intensitätsverteilung würde eine sehr genaue Messung der Critical-Voltage V_c zulassen. Eine solche rocking curve wurde schon 1972 von Lally, Humphreys, Metherell und Fisher [60] veröffentlicht.

1980 berichteten Sellar, Imeson und Humphreys [70,71] über entsprechende Untersuchungen des bei 305 kV am 222-Reflex von Kupfer auftretenden Critical-Voltage Effektes. Sie teilten aber mit, daß die scharfe Extinktionserscheinung nicht beobachtet werden konnte, was ihrer Meinung nach auf ein nicht ausreichendes Winkelauflösungsvermögen und auf den inelastischen Streuuntergrund zurückzuführen war.

Aufgrund dieser Berichte wurde im Rahmen der vorliegenden Arbeit versucht, solche rocking curves ebenfalls für den Critical-Voltage Effekt am 333-Reflex von Silizium zu berechnen und entsprechende experimentelle Untersuchungen durchzuführen. Bei den dazu erforderlichen Vielstrahlrechnungen wurden, wie schon in den vorangegangenen Abschnitten, das komplexe Eigenwertproblem der Gleichungen (4.34) und (4.35) gelöst. Für die Berücksichtigung der Absorptionserscheinungen ist die Kenntnis der Absorptionspotentiale erforderlich. In der Tabelle 5.2 sind die

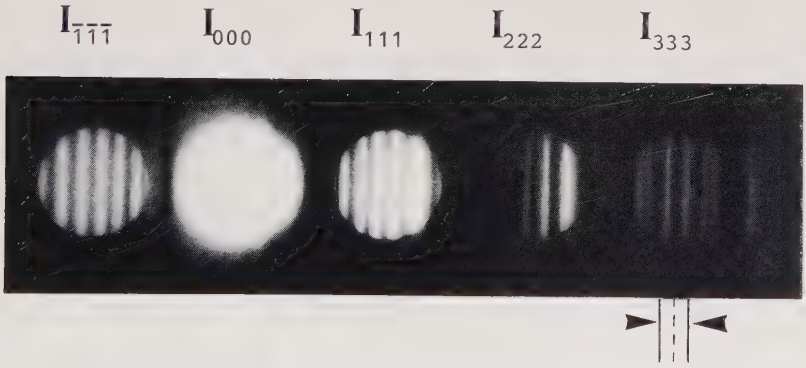
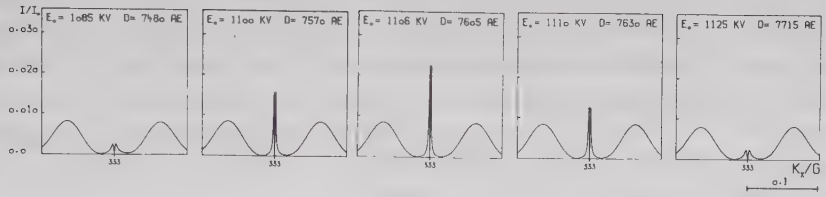


Abb. 42: Beugung im konvergenten Bündel bei der Critical-Voltage V_c = 1106 kV an einem 765 nm dicken Silizium-Einkristall. Die Achse des Primärkegels liegt in der Einfallsrichtung für die Anregung des 333-Reflexes. Die gestrichelte Linie gibt die exakte Lage des 333 Bragg-Reflexes im Beugungsbild an. Durch die zwei Pfeile ist der Winkelbereich markiert, für den die rocking curves der Abb. 43, 44 und 45 berechnet wurden.

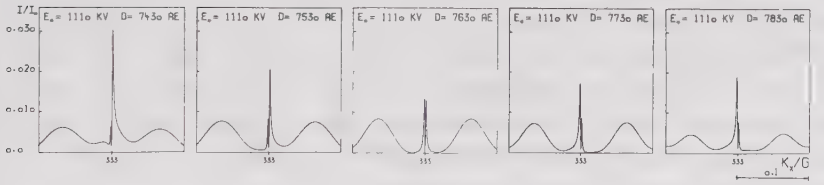
von Humphreys und Hirsch [28] und die von Radi [29] theoretisch berechneten Werte dargestellt. Sie mußten aus graphischen Darstellungen dieser Autoren entnommen werden. Die sich dabei ergebende Ungenauigkeit mag zum Teil erklären, daß Hewat für die von Humphreys und Hirsch berechneten Absorptionspotentiale etwas größere Werte angibt. Es ist auffällig, daß die mittleren Absorptionspotentiale V'_{000} mit 0,23 Volt (Humphreys und Hirsch) und 0,7 Volt (Radi) stark voneinander abweichen. Voss, Lehmpfuhl und Smith [52] geben einen experimentellen Wert von 0,61 Volt an. Ebenso sind auch die Absorptionspotentiale V'_{111} nur sehr ungenau bekannt. Hewat [63], eine Mitarbeiterin Humphreys, verwendete zur Auswertung des hier diskutierten Critical-Voltage Effektes in Vielstrahlrechnungen einen von Titchmarch [72] experimentell ermittelten Wert von $V'_{111} = -0{,}16$ Volt (bei 293 K und 100 kV-Elektronen), während Voss et al. für dieselben Bedingungen einen experimentellen Wert von nur $V'_{111} = -0{,}031$ Volt angeben, der um den Faktor 5 kleiner ist. Die theoretischen Werte liegen mit -0,11 Volt (Humphreys und Hirsch) und mit -0,10 Volt (Radi) dazwischen.

Die Abb. 42 zeigt ein Beugungsdiagramm im konvergenten Bündel, das exakt bei der Critical-Voltage $V_C = 1106$ kV aufgenommen wurde. Der Kristall ist so orientiert, daß der 333-Reflex direkt angeregt wird. Für den durch zwei Pfeile markierten Winkelbereich um die Lage des 333 Bragg-Reflexes herum, wurden für Beschleunigungsspannungen nahe bei V_C die rocking curves der Abb. 43, 44 und 45 berechnet. Die Einschußrichtung der Elektronen wurde dabei in Schritten von $2 \cdot 10^{-4}\ k_x/g$ geändert, was einem Winkelauflösungsvermögen von etwa $4 \cdot 10^{-7}$ rad entspricht. Für die rellen Strukturpotentiale wurden die in der Tabelle 5.1 angegebenen Werte und die Ergebnisse des Abschnittes VI.5 verwendet. Als mittleres Absorptionspotential wurde der von Voss et al. [52] angegebene Wert mit $V'_{111} = 0{,}61$ Volt eingesetzt. Die für die einzelnen Beugungsordnungen schließlich angenommenen Absorptionspotentiale sind ebenfalls in der Tabelle 5.2 wiedergegeben.



V'_{111} = -0,125 Volt

Abb. 43: Rocking curves im Bereich der Critical-Voltage V_c für den 333-Reflex von Silizium. In der exakten Bragg-Lage taucht ein aufgespaltener Intensitätspeak auf. Bei Annäherung an die Spannung V_c wird er höher und die Aufspaltung schärfer. Die Kristalldicken sind so gewählt, daß die Erscheinung symmetrisch ist. Die beiden breiten Maxima links und rechts stellen die in der Abb. 42 sichtbaren innersten Intensitätsstreifen dar.



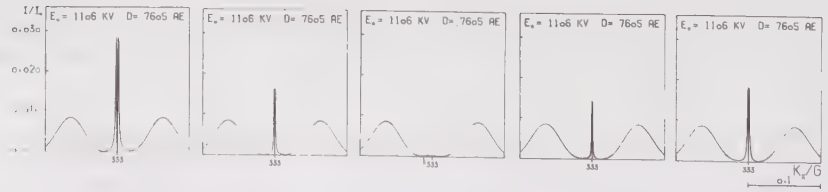
V'_{111} = -0,125 Volt

Abb. 44: Rocking curves für eine Beschleunigungsspannung von 1110 kV, die sehr nahe bei V_c liegt. Mit der Kristalldicke, die jeweils rechts oben angegeben ist, ändert sich die Symmetrie des aufgespaltenen Intensitäts-Peaks.

In den berechneten rocking curves der Abb. 43 und 44 ist auffällig, daß in der exakten Bragg-Lage des 333-Reflexes immer eine Intensitätsspitze auftaucht, die durch eine scharfes Minimum aufspaltet. Für bestimmte Kristalldicken ist die Intensitätsverteilung dieser Erscheinung symmetrisch (siehe Abb. 44).

Bei Annäherung an die Critical-Voltage wird die Intensitätsspitze sehr hoch und das sie aufspaltende Minimum extrem schmal. In der Abb. 43 umfaßt es, in Abhängigkeit von der Beschleunigungsspannung, einen Winkelbereich von $1 \cdot 10^{-6}$ rad bis $2 \cdot 10^{-5}$ rad. Die rocking curves der Abb. 43 ähneln sehr stark denjenigen, die von Sellar et al. [70,71] für den 222-Reflex von Kupfer berechnet wurden. Sie weisen daselbe Verhalten in Abhängigkeit von der Beschleunigungsspannung auf.

Im Laufe der Berechnungen der rocking curves zeigte sich, daß der aufgespaltene Intensitäts-Peak sehr empfindlich abhängig ist von der Wahl der in die Vielstrahlrechnungen eingehenden Absorptionspotentiale. Im Fall einer absorptionsfreien Betrachtungsweise taucht er überhaupt nicht auf. Aber es konnten auch Kombinationen von Absorptionspotentialen gefunden werden, für die er, auch bei Berücksichtigung der Absorption, ebenfalls nicht auftritt. Diese gefundenen Sätze von Absorptionspotentialen liegen vollkommen im Rahmen der oben zitierten theoretischen und experimentellen Werte der verschiedenen Autoren, so daß ihre Verwendung in den Vielstrahlrechnungen keinesfalls ausgeschlossen werden kann. Die Abb. 45 zeigt fünf rocking curves für den in der Abb. 42 markierten Bereich, die sich lediglich durch eine Variation des Absorptionspotentiales der ersten Ordnung V'_{111} unterscheiden. Für V'_{111} = -0,0875 Volt (mittlere rocking curve) verschwindet der Intensitätspeak völlig. Je weiter von diesem



V'_{111}: -0,13 -0,11 -0,0875 -0,07 -0,05 (Volt)

Abb. 45: Rocking Curves bei der Critical-Voltage V_c = 1106 kV für den 333-Reflex von Silizium. Für eine bestimmte Kombination von Absorptionspotentialen (siehe auch Tabelle 5.2) verschwindet der Doppelpeak völlig.

sehr scharf definierten Wert nach oben oder nach unten abgewichen wird, desto stärker tritt der Doppelpeak auf, und desto breiter wird die Aufspaltung. Diese auffällige Intensitätsmodulation bleibt ebenfalls noch verschwunden, wenn man die oben beobachtete Kombination von Werten der Absorptionspotentiale mit einem gemeinsamen Faktor multipliziert.

Eine Überprüfung des Vielstrahlrechenverfahrens ergab, daß auch in den vorliegenden Fällen das Eigenwertproblem mit voller Genauigkeit gelöst wird (siehe Teil A des Anhangs). Während eine Verschlechterung der Normen der definierten Residuenvektoren nicht festzustellen ist, tritt ein etwas erhöhter Rechenzeitaufwand auf. Mit den Intensitätsverteilungen der Abb. 43, 44 und 45 vollkommen übereinstimmende Resultate ergeben sich auch, wenn die Absorption nicht durch die strenge Lösung des Eigenwertproblemes aus der komplexen Matrix sondern durch eine Störungsrechnung, wie sie die Gleichung (4.33) beschreibt, berücksichtigt wird.

Aufgrund dieser Ergebnisse wurden auch rocking-curves für den Critical-Voltage Effekt am 440-Reflex von Silizium und am 222-Reflex von Kupfer, der Gegenstand der Untersuchungen von Moodie, Sellar, Imeson und Humphreys [68-71] war, durchgeführt. Es treten dabei dieselben markanten Intensitätsmodulationen auf. Wie beim 333-Reflex von Silizium können aber auch in diesen Fällen Kombinationen von Absorptonspotentialen gefunden werden, bei denen einerseits diese Modulation verschwindet, die aber andererseits vollkommen im Rahmen der theoretisch berechneten und experimentell beobachteten Werte liegen. Für das Absorptionspotential V'_{220} von Silizium ergibt sich aus dem Verschwinden des Intensitätspeaks bei der Critical-Voltage V_c = 1347 kV ein Wert von V'_{220} = -0,146 Volt (bei 293 K für 100 keV - Elektronen). Er stimmt gut mit dem aus der Asymmetrie der Intensitätsverteilung im Primärbündel bei der Beugung im konvergenten Bündel ermittelten Wert von V'_{220} = -0,13 Volt (siehe Abschnitt V.5) überein.

Die bisher dargestellten Resultate führen zu der Frage:

> Treten die außergewöhnlichen Intensitätsmodulationen, die bei der Critical-Voltage V_c in berechneten rocking-curves zu finden sind, tatsächlich im Experiment auf oder sind sie eventuell auf Unzulänglichkeiten des verwendeten theoretischen Modelles zur Berücksichtigung der anomalen Absorptionserscheinungen zurückzuführen ?

Ein direkter experimenteller Nachweis der Erscheinung ist wegen des dazu erforderlichen, enorm hohen Winkelauflösungsvermögens sehr schwierig und konnte auch von Sellar, Imeson und Humphreys [70,71] nicht erbracht werden. Diese Autoren interpretieren die von ihnen durchgeführten experimentellen Untersuchungen allerdings in der Weise, daß sie von der Existenz der von ihnen berechneten Intensitätsmodulationen ausgehen. Im Gegensatz dazu deuten die im Rahmen der vorliegenden Arbeiten durchgeführten und nachfolgend dargestellten Überlegungen und experimentellen Untersuchungen darauf hin, daß es sich bei den extremen Intensitätsmodulationen lediglich um rechnerische Artefakte handelt, die im Experiment nicht auftreten. Zu dieser Interpretation stehen auch die von den oben genannten Autoren

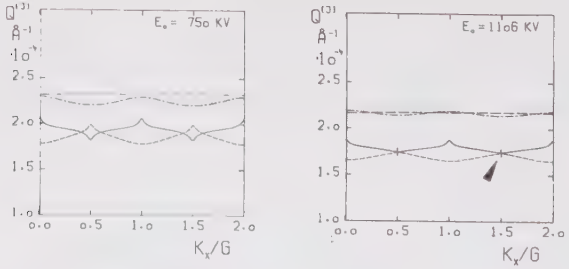
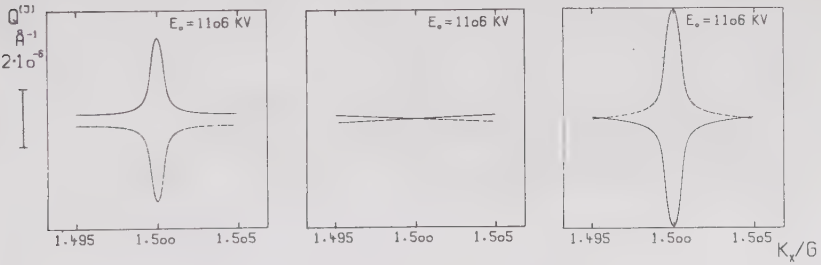


Abb. 46: Absorptionskoeffizienten $q^{(j)}$ der ersten vier Blochwellen für die (111)-Netzebenen von Silizium bei 750 kV und bei V_c = 1106 kV als Funktion der Einschußrichtung. V_{111} = -0,06 Volt. Für die Blochwellen 3 und 4 tritt an der durch einen Pfeil markierten Stelle bei der Spannung V_c ein scharfer Sprung der Absorptionskoeffizienten auf.

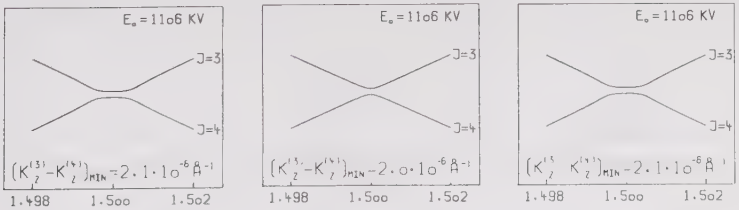
publizierten Beugungsdiagramme nicht im Widerspruch. Eine befriedigende Lösung des Problemes kann nur durch weitere theoretische Untersuchungen, die den Rahmen dieser Arbeit übersteigen würden, gefunden werden.

In der Abb. 46 sind die Absorptionskoeffizienten $q^{(j)}$ für die ersten vier Blochwellen, die sich aus einer Vielstrahlrechnung für die systematische Reihe der (lll)-Netzebenen von Silizium ergeben, in Abhängigkeit von der Einfallsrichtung der schnellen Elektronen aufgetragen. Das Absorptionspotential V'_{111} wurde zu -0,06 Volt gewählt. Während die Absorptionskoeffizienten $q^{(3)}$

a) Silizium 111 Blochwellen-Absorptionskoeffizienten



b) Silizium 111 Dispersionsfläche



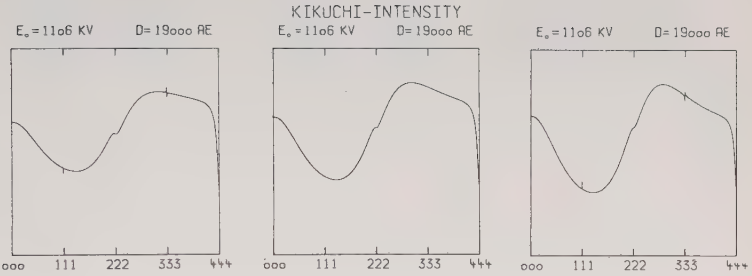
V'_{111}: -0,07 Volt -0,0875 Volt -0,11 Volt

Abb. 47: a) Absorptionskoeffizienten der Blochwellen 3 und 4 bei der Spannung V_C für unterschiedliche Werte des Absorptionspotentiales V'_{111}.

b) Einfluß der Wahl des Absorptionspotentiales V'_{111} auf die aus dem komplexen Eigenwertproblem berechnete Dispersionsfläche bei der Spannung V_C.

und $q^{(4)}$ der beiden Blochwellen, deren Wellenvektoren entarten, bei 750 kV noch die gewohnte Richtungsabhängigkeit zeigen (linkes Bild), tritt in der Bragg-Orientierung der ersten und dritten Ordnung bei der Critical-Voltage V_c = 1106 kV ein Sprung der beiden Koeffizienten auf (rechtes Bild). Dieser Sprung von $q^{(3)}$ und $q^{(4)}$ tritt ebenfalls genau dann nicht auf, wenn in die Vielstrahlrechnung diejenigen Kombinationen von Absorptionspotentialen eingesetzt werden, bei denen in den rocking-curves die auffälligen Intensitätsmodulationen verschwinden. Die beiden Erscheinungen sind also miteinander gekoppelt. Im Teil a) der Abb. 47 ist die Umgebung der Sprungstelle der Absorptionskoeffizienten detailliert dargestellt. Bei dem schon oben gefundenen Wert des Absorptionspotentiales V'_{111} = -0,0875 Volt berühren sich die für $q^{(3)}$ und $q^{(4)}$ gezeichneten Kurven in der exakten Bragg-Orientierung der dritten Ordnung ($k_x/g = 1,5$) bei der Beschleunigungsspannung V_c. Für abweichende Werte des Absorptionspotentiales V'_{111} treten in der Umgebung der Bragg-Lage starke Ausbuchtungen der Kurven auf (Bilder links und rechts), die sich in der Abb. 46 an der markierten Stelle als scharfe Sprünge ausnehmen. Der Blochwelle 3 entspricht die gestrichelte und der Blochwelle 4 die durchgezogene Kurve. Für Absorptionspotentiale V'_{111}, deren Betrag kleiner als 0,0875 Volt ist, weichen sich die beiden Kurven aus, während sie sich für betragsmäßig große Absorptionspotentiale V'_{111} überlappen. Berechnet man für den genannten Vielstrahlfall die Dispersionsfläche aus dem komplexen Eigenwertproblem, dann ist neben dem Sprung des Absorptionskoeffizienten gleichzeitig eine Deformation der Zweige 3 und 4 der Fläche zu beobachten. Sie ist im Teil b) der Abb. 47 dargestellt. Auch diese Erscheinung verschwindet bei der oben angegebenen Wahl der Absorptionspotentiale: Für V'_{111} = - 0,0875 Volt nimmt die Dispersionfläche bei der Critical-Voltage im Bereich des minimalen Abstandes der Zweige 3 und 4 die gewohnte Hyperbelform an (Teil b der Abb. 47, Mitte).

Ebenso werden die nach dem Verfahren von Thomas und Humphreys (Gleichung 6.11) berechneten Intensitäten in symmetrischen Kikuchi-Diagrammen beeinflußt. Die Linien der ersten und dritten Ordnung verschwinden bei V_c nur für die oben gefundenen Absorptionspotentiale völlig (siehe Abb. 48).



V_{111}': -0,07 Volt -0,0875 Volt -0,11 Volt

Abb. 48: Nach Gleichung (6.11) berechnete Intensitätsverläufe in symmetrischen Kikuchi-Diagrammen. Die Linien der ersten und dritten Ordnung verschwinden bei der Critical-Voltage V_c nur für die angegebene Kombination der Absorptionspotentiale völlig.

Wie im Abschnitt VI.5 beschrieben, werden beim Third-Order Critical-Voltage Effekt die mittleren kinetischen und mittleren potentiellen Energien der Blochwellen 3 und 4 gleich, und es findet ein Austausch der Symmetrien statt. Trotzdem ergeben sich bei beliebiger Wahl der Absorptionspotentiale in der exakten Bragg-Orientierung stark unterschiedliche Absorptionskoeffizienten $q^{(j)}$. Je näher man an die Critical-Voltage heranrückt, desto größer wird der Sprung der $q^{(j)}$. Sinnvoll dagegen ist, daß beim Austausch der Symmetrien für die beiden Blochwellen die Absorptionskoeffizienten gleich groß werden, wie dies im mittleren Diagramm der Abb. 47, Teil b vorliegt. Diese Forderung hat aber die Konsequenz, daß die Absorptionpotentiale nicht mehr frei wählbar sind, sondern konsistent mit den reellen Strukturpotentialen festgelegt werden müssen. Andererseits wird aber versucht, für das phänomenologisch eingeführte, imaginäre Absorptionspotential die Fourierkoeffizienten aus den inelastischen Streuprozessen abzuleiten .

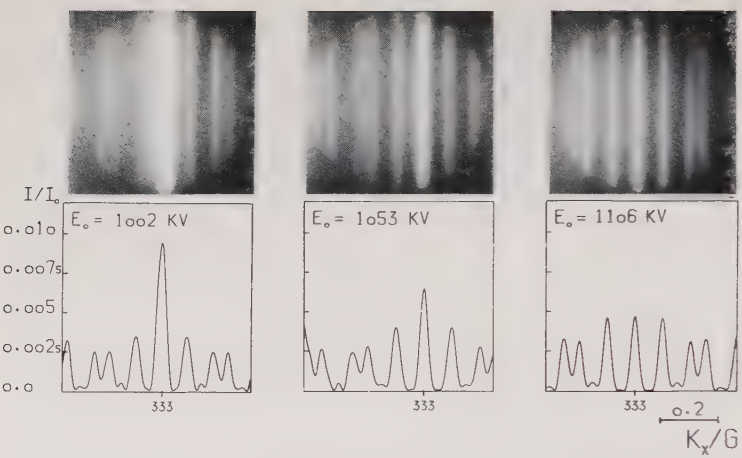


Abb. 49: Abnahme der Intensität im 333 Bragg-Reflex bei Annäherung an die Critical-Voltage V_C = 1106 kV.

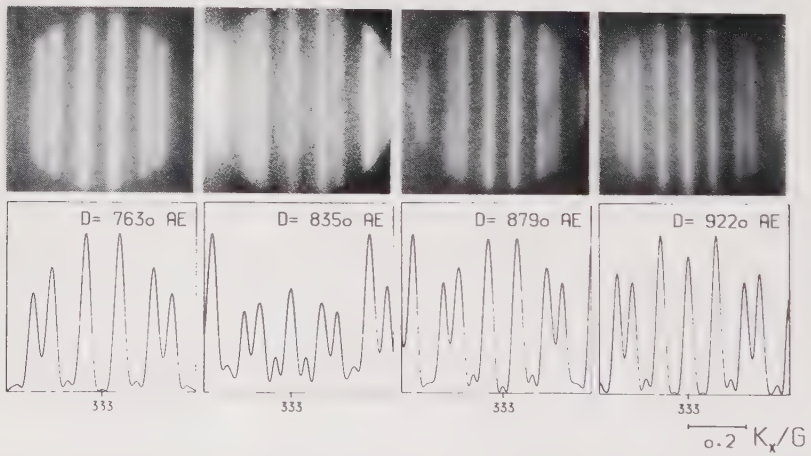


Abb. 50: Intensitätsverteilungen in der Umgebung des 333-Bragg-Reflexes bei der Critical -Voltage V_C für verschiedene Kristalldicken. In der exakten Bragg-Lage oszilliert die Intensität mit der sich ändernden Kristalldicke, überschreitet aber nicht die Intensität der Nebenstreifen.

In der Abb. 49 sind experimentell beobachtete Intensitätsscheiben des 333-Reflexes von Silizium wiedergegeben. Sie entsprechen der durch I_{333} bezeichneten Scheibe der Abb. 42. In der Lage des Bragg-Reflexes 333 wird die Intensität bei Annäherung an die Critical-Voltage V_c = 1106 kV zwar gering, verschwindet aber nicht völlig. Die verbleibende Intensität ist auf den in der Gleichung (6.10) durch Δ beschriebenen Beitrag aller schwach erregten Blochwellen zurückzuführen. Die stark erregten Blochwellen 3 und 4 leisten, da sie destruktiv miteinander interferieren, keinen Beitrag.

In der Abb. 50 sind die Reflexscheiben I_{333} für konstante Beschleunigungsspannung V_c = 1106 kV, aber unterschiedliche Kristalldicken dargestellt. Die Interferenz aller schwach erregten Blochwellen führt an der Stelle des exakten Bragg-Reflexes zu einer Oszillation der Intensität mit der sich ändernden Kristalldicke. Es gibt Dicken für die die Intensität völlig verschwindet. Andererseits überschreitet die Intensität im Bragg-Reflex bei der Critical-Voltage nie die Intensität der Nebenstreifen, wie es z. B. noch im linken Diagramm der Abb. 49 der Fall ist. Aus diesen Beugungsaufnahmen kann die Kristalldikke auf ± 15 Å bestimmt werden. Das entspricht einer Genauigkeit von ± 0,2 Prozent.

Die rocking-curves der Abb. 49 und 50 beschreiben alle experimentellen Intensitätsverläufe ausgezeichnet. Sie wurden unter Verwendung der oben angegebenen Kombination von Absorptionpotentialen (mit V'_{111} = -0,0875 Volt) berechnet. Bei einer anderen Wahl dieses Potentiales taucht in der exakten Bragg-Position der schon beschriebene Intensitätspeak in den berechneten rokking curves auf. Bei einer Variation der Kristalldicke kann sich zwar eine unsymmetrische Aufspaltung des Peaks ergeben, insgesamt bleibt er aber, wie die Abb. 44 zeigt, erhalten. Falls der Doppelpeak im Experiment auftaucht, kann keinesfalls, bei dem Winkelauflösungsvermögen der 1,25 MV-Beugungsanlage von $1 \cdot 10^{-4}$ rad, die scharfe Einsattelung registriert werden. Auch der gesamte Peak ist zu schmal um exakt aufgezeichnet werden zu können. Aber er muß, auch wenn über einen Winkelbereich von 10^{-4} rad gemittelt wird, einen zumindest kleinen Intensitätsbeitrag erbringen. Ob dieser Beitrag im Experiment auftritt, läßt sich

nur dann entscheiden, wenn sich keine zusätzliche Intensität überlagert. Für eine Untersuchung dieses Effektes ist es also günstig, den Ergebnissen der Abb. 50 entsprechend, eine Kristalldicke zu wählen, bei der am Ort des Bragg-Reflexes ein vollkommenes Intensitätsminimum vorliegt.

In der Abb. 51 sind Intensitätsscheiben I_{333} für Beschleunigungsspannungen von V_c =1106 kV bis 1213 kV wiedergegeben. In der mittleren Reihe sind für diese Diagramme rocking-curves unter Verwendung der bereits angegebenen Kombination von Absorptionspotentialen berechnet worden. Diese stimmen mit den gemessenen Intensitätsverläufen vollkommen überein. In der unteren Reihe sind rocking-curves für ein willkürlich gewähltes Absorptionspotential V'_{111} = -0,125 Volt dargestellt. Dies ist ein plausibler Wert, der zwischen den theoretischen Aussagen von Radi, Humphreys und Hirsch und dem von Hewat verwendeten, experimentellen Wert liegt. Außer in der unmittelbaren Umgebung der Lage des Bragg-Reflexes stimmen die rocking-curves der mittleren und der unteren Reihe miteinander überein. Bei der Critical-Voltage V_c taucht in den Kurven der unteren Reihe der extreme Doppelpeak auf. In den experimentellen Beugungsdiagrammen sind aber keine Anzeichen für solche Intensitätsbeiträge zu finden. Auch bei einer densitometrischen Untersuchung der Photoplatten kann am Ort des Bragg-Reflexes kein Anstieg der Intensität festgestellt werden.

Bei Beschleunigungsspannungen oberhalb von V_c geht in den rocking curves der unteren Reihe, der extreme Doppel-Peak in einen breiten und flacheren, asymmetrischen Intensitätsbeitrag über. Eine solche Asymmetrie zeigt sich aber auch deutlich in dem bei 1212 kV registrierten, experimentellen Beugungsdiagramm (Abb. 51 ganz rechts). Bei genauer Beobachtung kann man auch schon in den Abb. 40 und 41 solche Asymmetrien feststellen. Sie kehren sich beim Überschreiten der Critical-Voltage um. Bei der Berechnung der rocking curves wird diese Asymmetrie nur richtig beschrieben, wenn V'_{111} größer als 0,0875 Volt (siehe Abb. 40: V'_{111} = -0,10 Volt) gewählt wird. Beim Unterschreiten dieses Wertes kehrt sich die Asymmetrie sowohl in den rocking curves als auch in den berechneten Kikuchi-Diagrammen um.

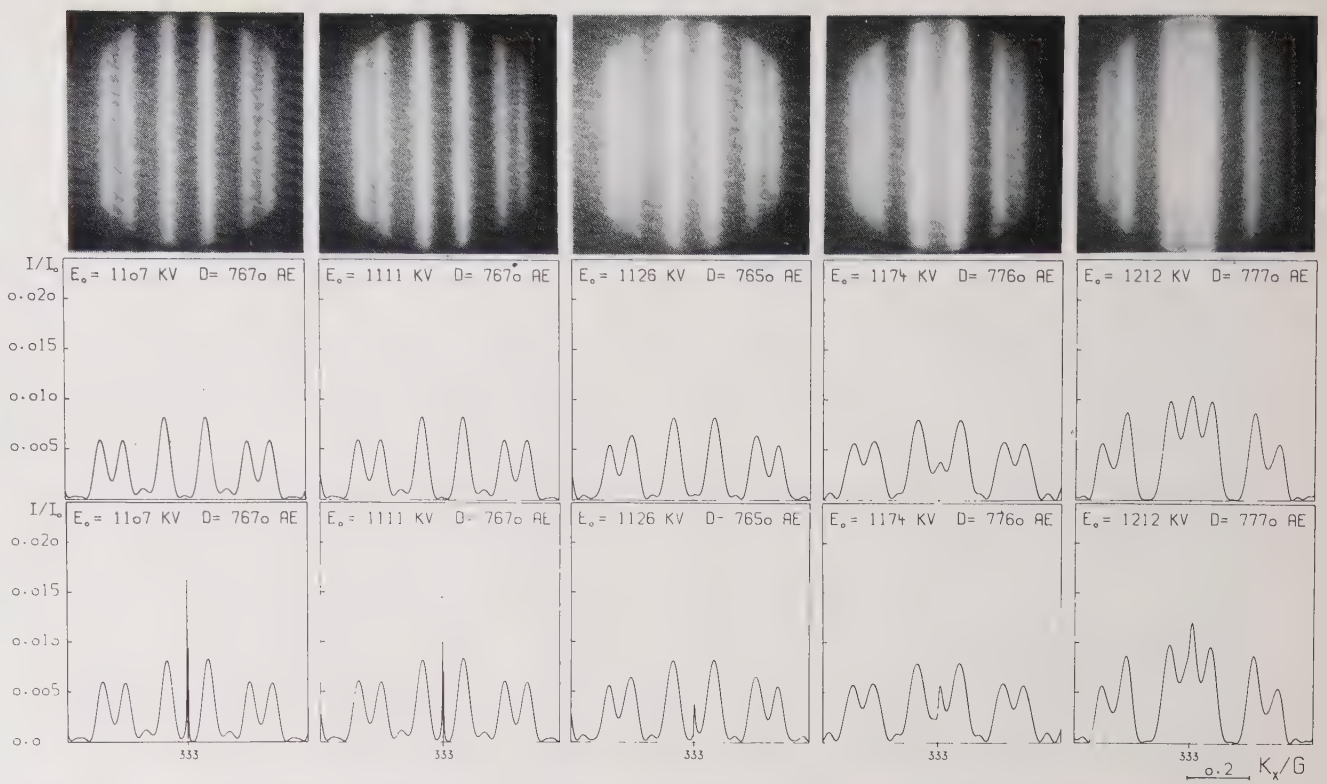


Abb. 51: Vergleich experimenteller Intensitätsverläufe in der Beugungsscheibe des 333-Reflexes (oben) mit berechneten rocking curves;
mittlere Reihe $V'_{111} = -0{,}0875$ Volt, untere Reihe $V'_{111} = -0{,}125$ Volt

Die von Sellar et al. [70,71] publizierten Diagramme widersprechen den hier gemachten Beobachtungen nicht. Sie können im Gegenteil in Übereinstimmung mit unseren Ergebnissen interpretiert werden. In ihren rocking curves berechnen Sellar et al. eine sehr scharfe Aufspaltung eines Intensitätsmaximums. Diese ist so schmal, daß nur ein geringer Teil der Intensität aufgezehrt wird. Experimentell beobachten sie aber an der Stelle des Doppel-Peaks ein breites Intensitätsminimum. Mit den hier erzielten Resultaten kann dies so interpretiert werden, daß die gesamte auffällige Intensitätsmodulation in den Experimenten überhaupt nicht auftaucht.

Zusammenfassend ist festzustellen, daß für Beschleunigungsspannungen, die nicht im Bereich der Critical-Voltage V_c liegen, die Absorptionspotentiale so gewählt werden können, daß die experimentellen Beugungsdiagramme sehr gut beschrieben werden. Versucht man aber, mit den so gewonnenen Absorptionspotentialen auch in unmittelbarer Nachbarschaft einer Critical-Voltage rokking curves zu berechnen, dann treten irreguläre, nicht durch die Experimente verifizierbare Intensitätsverteilungen auf. Diese sind wahrscheinlich rechnerische Artefakte, die auf Unzulänglichkeiten des bisher verwendeten Modelles des imaginären Absorptionspotentiales zurückzuführen sind. Es ist zu vermuten, daß zwischen den reellen Struktur- und den imaginären Absorptionspotentialen bisher nicht berücksichtigte Konsistenzforderungen bestehen.

VII.

ZUSAMMENFASSUNG

Mit einer speziell für hohe Beschleunigungsspannungen entwikkelten Beugungsanlage wurden Zwei- und Vielstrahleffekte bei Energien bis 1,25 MeV experimentell untersucht und mit den Aussagen der dynamischen Theorie der Elektronenbeugung verglichen.

Durch numerische Berechnung von elektrischen Potential- und Feldverteilungen sowie von Elektronenbahnen wurden wichtige Konstruktionsdaten der Anlage schon in der Planungsphase optimiert. Das Beschleunigungsrohr besteht aus sieben Rohrsegmenten, in denen jeweils 6 Beschleunigungsstufen zusammengefaßt sind. Jedes einzelne wurde in einem von uns entwickelten Vakuum-Gießverfahren aus Epoxydharz hergestellt. Ein ferngesteuertes Injektionssystem schießt einen Elektronenstrahl konstanter Energie in das Beschleunigungsrohr. Durch geeignete Formgebung der Elektroden und durch die darauf abgestimmte Anordnung des Injektionssystems gelingt es, den Einfluß des Erdmagnetfeldes auf die Elektronenbahnen im Beschleuniger zu kompensieren und eine unkontrollierte Emission von Röntgenstrahlen zu vermeiden. Mit einer Stabilisierungseinrichtung wird die Hochspannung in einem mehrstufig arbeitenden Verfahren bis zu $5 \cdot 10^{-5}$ stabilisiert. Die Messung der Hochspannung erfolgt über einen in das Beschleunigungsrohr integrierten frequenzunabhängigen Spannungsteiler. Zur Eichung dient die Elektronen-Beugung an polykristallinen Substanzen. Die Messung der Konstanz der Hochspannung wird mittels einer Energieanalyse der beschleunigten Elektronen überprüft. Der dazu verwendete Strahlengang beruht auf der Ausnutzung der chromatischen Fehler der Bilddrehung und der Vergrößerung einer magnetischen Elektronenlinse bei der Abbildung extrem achsenferner Gebiete. Durch die Aufstellung des schnell laufenden Einfaden-Van de Graaff-Generators in großer Entfernung vom Beschleuniger und durch die Verwendung magnetischer Abschirmungen gelang es,

elektrische, magnetische und mechanische Störungen ausreichend zu reduzieren.

Die Beugungssäule ist für Untersuchungen mit parallelem Elektronenstrahl und im konvergenten Bündel ausgelegt. Mit einer motorbetriebenen Objekthalterung läßt sich eine beliebige Orientierung der Kristalle zum Elektronenstrahl einstellen. Die Beugungsdiagramme werden mit einer automatisch gesteuerten Platten-Aufnahmekamera registriert, die von einer Röntgenabschirmung umgeben ist.

Die mit hohen Beschleunigungsspannungen zunehmenden Mehrstrahl-Wechselwirkungen, insbesondere das Auftreten des Critical-Voltage Effektes, wurden experimentell untersucht. Daraus ergibt sich einerseits eine Prüfung der dynamischen Theorie und andererseits eine Möglichkeit zur Bestimmung von Fourierkoeffizienten des komplexen Kristallpotentiales und von Kristalldicken mit hoher Präzision. Zur rechnerischen Lösung von Vielstrahl-Beugungsproblemen wurden auf der Grundlage des Blochwellenmodelles Computerprogramme entwickelt, in denen die in den Kristallen auftretende anomale Absorption durch die strenge Lösung einer komplexen Eigenwertaufgabe, und alternativ durch eine Störungsrechnung berücksichtigt wird. Früher schon von Kossel und Möllenstedt und von Wurster durchgeführte Beugungsexperimente im konvergenten Bündel an Muskovit-Einkristallen wurden ausgedehnt auf Beschleunigungsspannungen von über 1,1 MV. Der Vergleich von Zwei- und Vielstrahlauswertungen der Diagramme zeigt, daß die in der Praxis wegen ihrer Einfachheit wichtige Zweistrahlnäherung die Experimente noch richtig beschreibt. Dieses Ergebnis wird bestätigt durch Beugung im konvergenten Bündel an den (400)-Netzebenen von Silizium, für die ähnliche Strukturdaten wie beim den (331)-Netzebenen von Muskovit vorliegen. Bei der Erregung des 220-Reflexes von Silizium verliert die Zweistrahlnäherung für hohe Beschleunigungsspannungen ihre Gültigkeit. Sie muß durch eine Vielstrahlrechnung für die systematische Reihe der (220)-Netzebenen ersetzt werden. Aus allen Messungen ergaben sich die Dicken sowie Absorptions- und Strukturpotentiale der Kristalle. Für die Letzteren wurde eine Genauigkeit von 1 Prozent erreicht. Ergebnisse anderer Autoren modifizierend wurde eine Abschätzung für den Gültigkeitsbereich der Zweistrahlnähe-

rung der dynamischen Theorie im speziellen Fall der Beugung im konvergenten Bündel abgeleitet.

Weitere experimentelle und theoretische Untersuchungen befassten sich mit dem "Critical-Voltage Effekt". Für die (111)-Netzebenen von Silizium konnte der Effekt bei 1106 ± 7 kV in Kikuchi-Diagrammen und im konvergenten Bündel beobachtet werden. Aus diesen Messungen läßt sich das Strukturpotential V_{111} mit einem Fehler von 0,5 Prozent bestimmen, was der Genauigkeit der besten Röntgenstrahl-Beugungsmethoden entspricht.

In "rocking curves", die unter Berücksichtigung der anomalen Absorption für Spannungen in unmittelbarer Nähe der Critical-Voltage V_c berechnet werden, treten außergewöhnliche, extrem winkelabhängige Intensitätsmodulationen auf. In den letzten Jahren versuchte eine Arbeitsgruppe in England durch eine Beobachtung dieser Erscheinung die Genauigkeit bei der Bestimmung von Strukturpotentialen noch zu steigern.

In den hier durchgeführten Berechnungen ergab sich, daß für bestimmte Kombinationen von Absorptionspotentialen, die vollkommen im Rahmen der bisher bekannten experimentellen und näherungsweise theoretisch ermittelten Werte liegen, diese auffälligen Intensitätsmodulationen und andere mit ihnen verbundene Unregelmäßigkeiten nicht auftreten. In entsprechenden Beugungsexperimenten im konvergenten Bündel, mit denen die hier berechneten rocking curves ausgezeichnet übereinstimmten, waren ebenfalls keine Anzeichen für diese Intensitätsmodulationen zu beobachten. Es ist deshalb zu vermuten, daß es sich lediglich um rechnerische Artefakte handelt, die sich aus einem Zusammenbruch des Modells des phänomenologisch eingeführten imaginären Absorptionspotentiales bei der Critical-Voltage V_c erklären.

Bei Herrn Professor Gottfried Möllenstedt möchte ich mich für die Anregung dieser Arbeit und die ständige experimentelle Betreuung besonders bedanken.

Außerdem gebührt mein Dank:

Herrn Professor Erwin Kasper für die Betreuung des theoretischen Teils der Arbeit

Meinem Kollegen, Herrn Dipl.-Phys. Frank Gensler, für viele Diskussionen über Themen unseres Arbeitsgebietes und für seine Beratung in Fragen der Elektronik

Herrn Ingenieur Heinz Warth für seine technische Mitarbeit

Frau Klara Aicheler für ihre unermüdliche Arbeit zur Aufrechterhaltung höchster Staubfreiheit im Hochspannungslaboratorium und für viele freundliche Hilfen

der Institutswerkstatt unter der Leitung von Herrn Oberwerkmeister Otto Köhler für die präzise Bearbeitung der oft den Rahmen der Feinmechanik überschreitenden Aufträge, sowie Herrn Fritz Müller für konstruktive Hilfe

der Elektronikwerkstatt unter der Leitung von Herrn Egon Jensen

und allen anderen nichtgenannten Mitarbeitern des Instituts für Angewandte Physik und des Lehrstuhls für Theoretische Elektronenphysik, die mich unterstüzt haben.

Nicht zuletzt möchte ich auch meine Familie erwähnen.

Die Arbeit wurde dankenswerterweise von der Deutschen Forschungsgemeinschaft gefördert.

A N H A N G

A Das numerische Vielstrahlrechenverfahren

In der dynamischen Theorie der Elektronenbeugung ist eine Behandlung von Problemstellungen, bei denen mehr als zwei Reflexe auftreten, im allgemeinen nur in Verbindung mit numerischer Datenverarbeitung möglich. Für die in den Kapiteln V und VI beschriebenen Vielstrahlrechnungen wurde ein FORTRAN - Computerprogramm entwickelt, das es gestattet, auch die an den Kristallen auftretende anomale Absorption zu berücksichtigen. Das Programm beruht auf der Lösung des in den Gleichungen (4.34) und (4.35) beschriebenen Eigenwertproblems für die komplexe Matrix $\mathbf{G}$. Bei Vielstrahlrechnungen für zentrosymmetrische Kristalle, wie Silizium, ist die Matrix $\mathbf{G}$ komplex symmetrisch. Dann gilt die in der Gleichung (4.36) angegebene komplexe Orthogonalität der Eigenvektoren.

Die Programmentwicklung und die Rechnungen wurden auf dem Großrechner TELEFUNKEN TR 440 des Zentrums für Datenverarbeitung der Universität Tübingen durchgeführt. Auf dieser Anlage stehen on-line bewährte, in single-precision arbeitende Bibliotheks-Unterprogramme der International Mathematical and Statistical Libraries Inc. (IMSL) und der Numerical Algorithms Group (NAG) zur Verfügung. Während des Zeitraumes der hier durchgeführten Vielstrahlrechnungen waren implementiert die IMSL-Bibliothek Edition 8 und die NAG-Bibliothek Mark 8. Off-line steht außerdem das Programmpaket EISPACK des Argonne National Laboratory zur Verfügung. Der Rechner TR 440 arbeitet bei einfacher Genauigkeit mit 10 bis 12 signifikanten Dezimalstellen.

Für komplexe Matrizen können Eigenwertprobleme mit Hilfe der IMSL-Subroutine "EIGCC" oder mittels der NAG-Subroutine "F02AKF" gelöst werden. Beide liefern, wie ausführliche Tests gezeigt haben, bei den hier gegebenen Aufgaben sowohl für die Eigenwerte als auch für die Eigenvektoren vollkommen identische Ergebnisse.

Es wurde schließlich die IMSL-Subroutine EIGCC für die Rechnungen eingesetzt. Ihre Arbeitsweise beruht auf einer Reduktion der komplexen Matrix auf Hessenbergform und einer anschließenden Anwendung des LR-Algorithmus.

Bei der numerischen Lösung von Eigenwertproblemen sind die für die Eigenvektoren gefundenen Ergebnisse äußerst empfindlich abhängig von der Genauigkeit, mit der die Eigenwerte ermittelt werden. In schlecht konditionierten Fällen können die Eigenvektoren, auch bei einer Bestimmung der Eigenwerte bis auf die mit dem jeweiligen Computer erreichbare Genauigkeit, noch unbrauchbar sein. Die Ergebnisse verschlechtern sich insbesondere dann, wenn eine Entartung von Eigenwerten auftritt. Dieser Fall tritt aber gerade bei den Vielstrahlrechnungen zum Critical-Voltage Effekt näherungsweise auf, über die im Kapitel VI berichtet wurde. Die berechneten Lösungen wurden deshalb nach den im folgenden beschriebenen Methoden geprüft.

Für das Eigenwertproblem $\mathbf{A} \cdot \vec{x} = \lambda \cdot \vec{x}$ mit einem Eigenwert λ_j und dem zugehörigen Eigenvektor $\vec{x}^{(j)}$ wird der Residuenvektor $\vec{r}^{(j)}$ definiert:

$$\vec{r}^{(j)} := \mathbf{A} \cdot \vec{x}^{(j)} - \lambda_j \cdot \vec{x}^{(j)}$$

Sind λ_j und $\vec{x}^{(j)}$ exakte Lösungen des Problems, dann muß $\vec{r}^{(j)}$ gleich dem Nullvektor sein. Nach Wilkinson [73] gibt in den Fällen, in denen λ_j und $\vec{x}^{(j)}$ nur Näherungslösungen sind, wie man sie bei numerischen Berechnungen vorliegen hat, eine Norm von $\vec{r}^{(j)}$ Aufschluß über die erreichten Genauigkeiten. Eine hierfür mögliche Vektornorm ist gegeben durch:

$$\| \vec{x} \|_1 = \sum_i | x_i |$$

Mit ihr ist die folgende, auch als Spaltennorm bezeichnete, Matrixnorm verträglich:

$$\| \mathbf{A} \|_1 = \max_j \sum_i | a_{ij} |$$

Die IMSL-Subroutine EIGCC kann bei jedem Aufruf optional einen Güteindex p berechnen, in dem die Normen der Residuenvektoren $\vec{r}^{(j)}$ mit der Norm der Matrix $\mathbf{A}$, mit der Norm der zugehörigen Eigenvektoren $\vec{x}^{(j)}$ und mit der durch eps bezeichneten Genauigkeit des Rechners verglichen wird:

$$p = \max_{1 \leq j \leq n} \frac{\left\| \mathbf{A} \cdot \vec{x}^{(j)} - \lambda_j \cdot \vec{x}^{(j)} \right\|_1}{\|\mathbf{A}\|_1 \cdot \left\| \vec{x}^{(j)} \right\|_1 \cdot 10 \cdot n \cdot eps}$$

n ist der Rang der Matrix $\mathbf{A}$. Bei den im Rahmen der Arbeit durchgeführten Untersuchungen und insbesondere bei den Berechnungen zum Critical-Voltage Effekt zeigte sich, daß für p nie der Wert 1 überschritten wurde. Damit konnte nach Wilkinson von einer sehr guten Genauigkeit der Ergebnisse ausgegangen werden. Es wurden aber zusätzlich folgende weiteren Tests durchgeführt. In dem Vielstrahlproblem wurden die berechneten Eigenvektoren nach Gleichung (4.26) auf 1 normiert. Eine Berechnung der sich dann ergebenden euklidischen Norm der Residuenvektoren lieferte immer Werte die unter $1 \cdot 10^{-10}$ lagen. Nach Gleichung (4.36) kann die komplexe Orthogonalität geprüft werden. Die erhaltenen Werte lagen zwischen 10^{-7} und 10^{-10}.

Zum Vergleich zu den hier untersuchten IMSL- und NAG- Unterprogrammen wurde von Frau Dr. Kanellopoulos vom Zentrum für Datenverarbeitung, bei der ich mich für die freundliche Beratung bedanken möchte, eine Kombination von Subroutinen aus der EISPACK-Bibliothek auf der UNIVAC 1100/80 - Rechenanlage getestet. Es zeigte sich dabei, daß die einfache Genauigkeit dieser Maschine mit nur 8 signifikanten Dezimalstellen nicht ausreicht, um genaue Lösungen der hier gegebenen Eigenwertprobleme zu liefern.

Dem Zentrum für Datenverarbeitung sei an dieser Stelle für die Bereitstellung der Rechenkapazitäten Dank gesagt.

B: Partialwellenzerlegung für Beugung im konvergenten Bündel

Nachfolgend ist ein Auszug aus der von Kasper gehaltenen Vorlesung "Theorie der Elektronenstreuung in Kristallen" [16] dargestellt.

Das einfallende konvergente Bündel kann in ebene Partialwellen zerlegt werden, die durch einen Einheitsvektor $\vec{e} = \vec{k}/|\vec{k}|$ charakterisiert sind. Auf jede dieser ebenen Wellen kann im Kristall die dynamische Theorie, wie sie z.B. im Kapitel IV dargestellt ist, angewendet werden. $\vec{k}$ ist der Wellenvektor mit $|\vec{k}| = 2\pi/\lambda$. Mit der räumlichen Apertur A des Bündels ist die Gesamtwellenfunktion $\psi_e(\vec{r})$ des Bündels im Vakuum vor dem Kristall:

$$\psi_e(\vec{r}) = \iint_A A(\vec{k}) \cdot \exp[i(\vec{k}\cdot\vec{r})]\, d\Omega \qquad (1)$$

$A(\vec{k})$ gibt die Amplituden der einfallenden Partialwellen an und $d\Omega$ ist das Raumwinkelelement. Es wird ein Koordinatensystem gewählt mit dem Ursprung in der Kristalloberfläche, und einer zur einwärtsgerichteten Oberflächen-Normalen parallelen z-Achse. Zur einfallenden Partialwelle $\exp[i(\vec{k}\cdot\vec{r})]$ tritt im Zweistrahlfall eine ungebeugte Welle $T(z,\vec{e})\cdot\exp[i(\vec{k}\cdot\vec{r})]$ und eine gestreute Welle $S(z,\vec{e})\cdot\exp[i(\vec{k}+\vec{g}+\vec{s}_g)\cdot\vec{r}]$ auf. Die Transmissionsfunktion $T(z,\vec{e})$ und die Streufunktion $S(z,\vec{e})$ ergeben sich aus der dynamischen Theorie. Die Gesamtlösung erhält man durch lineare Superposition der Partialwellen. Für die Wellenfunktion $\psi_t(\vec{r})$ des transmittierten Bündels und $\psi_s(\vec{r})$ des abgebeugten Bündels ergibt sich:

$$\psi_t(\vec{r}) = \iint_A A(\vec{k}) \cdot T(z,\vec{e}) \cdot \exp[i(\vec{k}\cdot\vec{r})]\, d\Omega \qquad (2)$$

$$\psi_s(\vec{r}) = \iint_A A(\vec{k}) \cdot S(z,\vec{e}) \cdot \exp[i(\vec{k}+\vec{g}+\vec{s}_g)\cdot\vec{r}]\, d\Omega \qquad (3)$$

In den Experimenten ist die als kreisförmig betrachtete, bestrahlte Kristallfläche sehr klein. Die gesamte Intensität wird über sie aufintegriert und hinter dem Kristall in Anteile verschiedener Richtungen zerlegt. Mit dem Flächenelement $df = dx\cdot dy$ wird:

$$I_t = \iint_F \psi_t^*(\vec{r}) \cdot \psi_t(\vec{r}) \; df \tag{4}$$

I_e und I_s ergeben sich analog. Dann ist mit (2)

$$I_t = \iint_F \iint_\Omega \iint_{\Omega'} A^*(\vec{k}') \cdot T^*(z,\vec{e}') \cdot A(\vec{k}) \cdot T(z,\vec{e}) \cdot \exp[i(\vec{k}-\vec{k}')\cdot\vec{r}] \, d\Omega' \; d\Omega \; df$$

Da stets über endliche Bereiche integriert wird, dürfen die Integrationen über Fläche und Raumwinkel vertauscht werden:

$$I_t = \iint_\Omega \iint_{\Omega'} A^*(\vec{k}') \cdot T^*(z,\vec{e}') \cdot A(\vec{k}) \cdot T(z,\vec{e}) \cdot \left(\iint_F \exp[i(\vec{k}-\vec{k}')\cdot\vec{r}] df \right) d\Omega' \, d\Omega \tag{5}$$

Die Integration über die bestrahlte Fläche führt auf eine Besselfunktion für eine Kreisscheibe. In Polarkoordinaten ergibt sich mit einem Radius R für

$$\hat{I}_t := \iint_F \exp[i(\vec{k}-\vec{k}')\cdot\vec{r}] df$$

$$\hat{I}_t = \int_{r=0}^{R} \int_{\varphi=0}^{2\pi} \exp\left\{ i(k_x-k_x')\cdot x + i(k_y-k_y')\cdot y \right\} \cdot r \; dr \; d\varphi$$

Wird $\varphi=0$ für die Richtung $\vec{k}-\vec{k}'$ gewählt und $k_z = k_z'$ angenommen, was bei den üblichen Aperturen von 10^{-2} und bei annähernd senkrechter Inzidenz gut erfüllt ist, dann führt die Integration über φ mit der Besselfunktion J_o auf:

$$\hat{I}_t = 2\pi \int_{r=0}^{R} J_o(|\vec{k}-\vec{k}'|\cdot r)\cdot r \; dr$$

Die Integration über r ergibt mit den Regeln über Besselfunktionen dann:

$$\hat{I}_t = \pi R^2 \cdot \frac{2\cdot J_1(|\vec{k}-\vec{k}'|\cdot R)}{|\vec{k}-\vec{k}'|\cdot R} \tag{6}$$

Zusammen mit (5) ist dies ein ausgesprochen kompliziertes Resultat. Es vereinfacht sich allerdings erheblich für große bestrahlte Flächen, also wenn gilt:

$$|\vec{k}-\vec{k}'|_{max} \cdot R = 2|\vec{k}| \cdot R \cdot \alpha >> 1 \qquad (7)$$

α ist der Aperturwinkel des einfallenden Bündels. Anstatt des Ausdrucks der Gleichung (6) erhält man dann für I_t eine Diracsche δ-Funktion, die sich in kartesischen Koordinaten ergibt als:

$$\hat{I}_t = \exp[i(k_z-k'_z)\cdot z] \cdot \int_{-\infty}^{\infty} \exp[i(k_x-k'_x)\cdot x]\, dx \cdot \int_{-\infty}^{\infty} \exp[i(k_y-k'_y)\cdot y]\, dy$$

$$\hat{I}_t = 2\pi \cdot \delta(k_x-k'_x) \cdot 2\pi \cdot \delta(k_y-k'_y) \qquad (8)$$

Für Aperturen bis 10^{-2} gilt in ausreichender Näherung: $d\Omega = (1/k^2)\, dk_x\, dk_y$ und analog $d\Omega' = (1/k^2)\, dk'_x\, dk'_y$. Wenn man (8) in (5) einsetzt, dann ergibt sich:

$$I_t = (4\pi^2/k^4) \iint_k |A(\vec{k})|^2 \cdot |T(z,\vec{e})|^2\, dk_x\, dk_y$$

oder

$$I_t = \lambda^2 \iint_A |A(\vec{k})|^2 \cdot |T(z,\vec{e})|^2\, d\Omega \qquad (9)$$

Die Berechnung der Intensitäten I_e und I_s verläuft analog. Bei der Integration der Gleichung (5) erhält man also, wenn man von großen bestrahlten Flächen ausgeht, nur einen Beitrag für $\vec{k}' = \vec{k}$. Die Gleichung (7) stellt die Verletzung der Winkelkohärenz-Bedingung dar.

Literaturverzeichnis

1 Herrmann, K.H.: J. of Micr. 130, (1983), 158

2 Bailitis, E.: Z. f. angew. Phys. 13, (1961), 36

3 Hiller, H.: Optik 59, (1981), 219 und 273

4 Stumpp, H.: Diplomarbeit, Universität Tübingen, (1975)

5 Lenz, F.: Numerische Elektronenoptik, Vorlesung im SS 73 u. WS 73/74, Universität Tübingen

6 Gensler, F.: Veröffentlichung in Vorbereitung

7 Kasper, E.: persönliche Mitteilungen

8 Kasper, E.: Numerische Elektronenoptik, Vorlesung im SS 77 u. WS 77/78, Universität Tübingen

9 Moliere, K. und Niehrs, H.: Z. f. Phys. 137, (1954), 445

10 Lehmpfuhl, G. und Moliere, K.: Proc. Int. Conf. on Magnetism and Cristallograhy, 1961, Vol. II, 130

11 Speidel, R.: persönliche Mitteilungen

12 Kasper, E.: Theoretische Elektronenoptik A und B, Vorlesung im Ws 78/79 u. SS 79, Universität Tübingen

13 Lenz, F.: Die Naturwissenschaften 22, (1951), 524

14 Lenz, F.: Optik 10, (1953),439

15 Liu, X.: Proc. 10th Int. Conf. on El. Micr., Vol. I, (1982), 327

16 Kasper, E.: Theorie der Elektronenstreung in Kristallen, Vorlesung im WS 76/77, Universität Tübingen

17 Bethe, H.: Ann. Phys. Lpz. 87, (1928), 55

18 Berry, M.V.: J. Phys. C 4, (1971), 697

19 Hurley, A.C., Johnson, A.W.S., Moddie, A.F., Rez, P. und Sellar J.R.: in "Electron Diffraction 1927-77", Inst. Phys. Conf. Ser. 41, (1978), 34

20 Darwin, C.G.: Phil. Mag. 27, (1914), 315 u. 675

21 Howie, A. und Whealan, M.J.: Proc. R. Soc. A 263, (1961), 217

22 Cowley, J.M. und Moodie, A.F.: Proc. Phys. Soc. B 70, (1957), 486

23 Kasper, E.: Optik und Elektronenoptik, Vorlesung im WS 1981/82, Universität Tübingen

24 Metherell, A.J.F.: in "Electron Microscopy in Materials Science", Teil II, (1975), 397

25 Yoshioka, H.: J. Phys. Soc. Japan 12, (1957), 618

26 Hashimoto, H., Howie, A. und Whelan, M.J.: Proc. R. Soc. A 269, (1962), 80

27 Kasper, E.: Z. Physik 222, (1969), 225

28 Humphreys, C.J. und Hirsch, P.B.: Phil. Mag. 18, (1968), 115

29 Radi, G.: Z. Physik 212, (1968), 146

30 Howie, A.: in "Diffraction and Imaging Techniques in Material Science" Vol. II, (1978), 457

31 Humphreys, C.J.: Rep. Prog. Phys. 42, (1979), 1825

32 Hewat, E. und Humphreys, C.J.: in "High Voltage Electron Microscopy", (1974), 52

33 Goodman, P.: in "Electron Diffraction 1927-77", (1978), 116

34 Thomas, L.E. und Humphreys, C.J.: Phys. Stat. Sol. (a) 3, (1970), 599

35 Kossel, W. und Möllenstedt, G.: Annalen der Physik 36, (1939), 113 und 42, (1942), 287

36 Möllenstedt, G.: Annalen der Physik 40, (1941), 39

37 Mac Gillavry, C.H.: Physica 7, 329

38 Kasper, E.: Elektronen in Festkörpern, Vorlesung im SS 73, Universität Tübingen

39 Basche, R.: Diplomarbeit (1978), Universität Tübingen

40 Serneels, R. und Gevers, R.: Phys. Stat. Sol. 33, (1969), 703

41 Whelan, M.J. und Humphreys, C.J.: Proc. 5th Int. Conf. on HVEM, Kyoto, (1977), 191

42 Lehmpfuhl, G.: Proc. 9th Int. Conf. on El. Micr., Toronto, Vol. III, (1978), 304

43 Gaukler, K.H. und Graff, K.: Z. Physik 232, (1970), 190

44 Meyer-Ehmsen, G.: Z. Physik 218, (1969), 352

45 Wurster, R.: Optik 51, (1978), 59

46 Möllenstedt, G.: Nachr. d. Akad. d. Wiss. in Göttingen Math.-Phys. Kl., (1946), 83

47 Uyeda, R.: Proc. 5th Int. Conf. on HVEM, Kyoto, (1977), 3

48 Fujiwara, K.: J.Phys. Soc. Japan 17,Suppl. BII, (1962), 118

49 Haussühl, S.: in "Kristallstruktur-Bestimmung", tate 65

50 Aldred, P. und Hart, M.: Proc. R. Soc. London A 332, (1973), 223

51 Doyle, P. und Turner, P.: Acta Cryst. A 24, (1968), 390

52 Voss, R., Lehmpfuhl, G. und Smith, P.: Z. Naturf. 35 a, (1980), 973

53 Ichimiya, A. und Lehmpfuhl, G.: Z. Naturf. 33 a, (1978), 269

54 Terasaki, O., Watanabe, D. und Gjønnes, J.: Acta Cryst. A 35, (1979), 895

55 Nagata, F. und Fukuhara, A.: Jap. J. Appl. Phys. 6, (1967), 1233

56 Uyeda, R.: Acta Cryst. A24, (1968), 175

57 Watanabe, D., Uyeda, R. und Kogiso, M.: Acta Cryst. A 24, (1968), 249

58 Thomas, L.E.: Phil. Mag. 26, (1972), 1447

59 Cowley, J.M.: "Diffraction Physics", 330

60 Lally, J.S., Humphreys, C.J., Metherell, A.J.F. und Fisher, R.M.: Phil. Mag. 25, (1972), 321

61 Metherell, A.J.F. und Fisher, R.M.: Phys. Stat. Sol. 32, (1969), 551

62 Humphreys, C.J. und Fisher, R.M.: Acta Cryst. A 27, (1971), 42

63 Hewat, E.A.: Dissertation (1975), Universität Oxford, England

64 Pogany, A.P. und Turner, P.S.: Acta Cryst. A24, (1968), 103

65 Goodman, P. und Lehmpfuhl, G.: Acta Cryst. 22, (1967), 14

66 Tanemura, S. und Kato, N.: Acta Cryst. A28, (1972), 69

67 Shishido, T. und Tanaka, M.: Phys. Stat. Sol. (a) 38, (1976), 453

68 Moodie, A.F., Sellar, J.R., Imeson, D. und Humphreys, C.J.: Proc. 5th Int. Conf. on HVEM, Kyoto, (1977), 191

69 Moodie, A.F., Sellar, J.R., Imeson, D. und Humphreys, C.J.: in "Electron Diffraction 1927-77", (1978), 129

70 Sellar, J.R., Imeson, D. und Humphreys, C.J.: Proc. 6th Int. Conf. on HVEM, The Hague, (1980), 120

71 Sellar, J.R., Imeson, D. und Humphreys, C.J.: Acta Cryst. A 36, (1980), 686

72 Titchmarsch, J.M.: Dissertation (1971), Universität Oxford, England

73 Wilkinson, J.H.: "Rundungsfehler" HT 44, (1969)

74 Gjønnes, J.: in "Fifty Years of Electron Diffraction", (1981), 408

L e b e n s l a u f

19.12.1948 geboren in Hirrlingen, Landkreis Tübingen
Eltern: Bernhard Stumpp, Schuhfabrikant
Antonia Stumpp, geb. Hipp

1955 Eintritt in die Volksschule in Hirrlingen

1959 Übergang in das Eugen-Bolz-Gymnasium in Rottenburg am Neckar

1967 dort Reifeprüfung

1967 - 1969 Grundwehrdienst

1969 Aufnahme des Studiums der Physik an der Eberhard-Karls-Universität in Tübingen

18. 3. 1976 Diplomhauptprüfung
Diplomarbeit unter Anleitung von Prof.Dr. G. Möllenstedt und H. Hiller am Institut für Angewandte Physik der Universität Tübingen mit dem Thema:
"Ein gießtechnisches Verfahren zur Herstellung eines elektrostatischen Beschleunigungsrohres aus Epoxydharz".

April 1976 bis April 1983 Arbeit an der vorliegenden Dissertation im Institut für Angewandte Physik unter der Leitung von Prof. Dr. G. Möllenstedt mit dem Thema:
"Entwicklung einer 1,25 MV-Elektronen-Beugungsanlage und Untersuchung dynamischer Vielstrahlwechselwirkungen von Elektronen in Einkristallen".

Ich bin seit dem 15. Juli 1981 mit Verena Genest aus Kempten verheiratet. Wir haben einen Sohn.

Meine akademischen Lehrer waren in der Physik die Herren Professoren und Dozenten:

Baumann, Braunbeck, Elwert, Gaukler, Gönnenwein, Höhn, Kasper, Krüger, Lenz, Mack, Mitter, Möllenstedt, Mühleisen, Pfister, Schief, Sommer, Speidel und Stumpf

in der Mathematik die Herren:

Beeckmann, Fischer, Radbruch und Wolf

und in der Chemie die Herren:

Müller, Rüdorff und Viebahn.

Offsetdruck Spengler
Lessingstraße 4 · 7401 Neustetten 1
Telefon (0 74 72) 2 21 45